

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS
Departamento de Física Fundamental



TESIS DOCTORAL

**Metrología de la radiactividad beta mediante el recuento por
centelleo en fase líquida**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR
PRESENTADA POR

Agustín Grau Malonda

DIRECTOR:

José Campos Gutierrez

Madrid, 2015

Agustín Grau Malonda

TP
1982
171



X-53-031469-9

METROLOGIA DE LA RADIATIVIDAD BETA MEDIANTE EL RECuento

POR CENTELLEO EN FASE LIQUIDA

Departamento de Física Fundamental
Facultad de Ciencias Físicas
Universidad Complutense de Madrid
1982



BIBLIOTECA

Colección Tesis Doctorales. Nº 171/82

© Agustín Grau Malonda
Edita e imprime la Editorial de la Universidad
Complutense de Madrid. Servicio de Reprografía
Noviciado, 3 Madrid-8
Madrid, 1982
Xerox 9200 XB 480
Depósito Legal: M-24643-1982

Memoria que para optar al Grado de Doctor
en Ciencias Físicas presenta

AGUSTIN GRAU MALONDA

METROLOGIA DE LA RADIATIVIDAD BETA MEDIANTE EL
RECuento POR CENTELLEO EN FASE LIQUIDA

Director : JOSE CAMPOS GUTIERREZ
Profesor Adjunto de
Física Atómica y Nuclear

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FISICAS

MADRID - 1980

AGRADECIMIENTOS

Deseo hacer constar aquí mi agradecimiento al Profesor Dr. D. Carlos - Sánchez del Río, Catedrático de Física Atómica y Nuclear, por el apoyo e - interés que siempre mostró por mis trabajos en el campo del centelleo en - fase líquida, y por sus sugerencias que fueron el origen de esta memoria.

Al Profesor Dr. D. José Campos Gutiérrez agradezco la dedicación y entusiasmo puesto en la dirección de estos trabajos.

A la Dra. D^a M^a Aránzazu Vigón Sánchez, Jefe de la División de Investigación Básica de la Junta de Energía Nuclear, agradezco su profunda, eficaz y valiosa crítica del manuscrito de esta memoria, así como su apoyo en todas las fases de este trabajo.

Al Dr. D. Carlos Enrique Granados, Jefe de la Sección de Metrología de la J.E.N., agradezco su ayuda y facilidades en la ejecución de este trabajo.

A mis compañeros D. Eduardo García Toraño y D. José M^a los Arcos agradezco su eficaz cooperación en la elaboración de los programas de cálculo, y al Dr. D. Juan Galiano Sedano, su asistencia en los problemas químicos - surgidos.

A D^a Soledad Chereguini, agradezco su paciente, minuciosa y diligente colaboración en la preparación y medida de los varios miles de muestras en sayadas.

También mi agradecimiento a D. Carlos Díaz y a D^a Yolanda Vázquez por su contribución a la calibración de los patrones gamma.

Asimismo, mi agradecimiento a D^a M^a Encarnación Redondo por el gran esmero con que ha mecanografiado el texto, y a D. Manuel Montero por su pulcritud en la delineación de las figuras.

Por último, mi agradecimiento a todos los compañeros de la J.E.N. que, directa o indirectamente, han contribuido a la realización de esta memoria.

INDICE

	<u>Página</u>
I. INTRODUCCION	1
II. FENOMENOLOGIA	5
2.1 Interacción de partículas cargadas con el líquido centelleador	5
2.2 Transferencia energética disolvente-disolvente ...	7
2.3 Transferencia energética disolvente-soluto	9
2.4 Transferencia energética soluto-soluto	10
2.5 Fluorescencia del soluto	11
2.6 Extinción de la emisión luminosa	12
2.6.1 Extinción debida a efectos químicos	13
2.6.2 Extinción producida por el color de la mues- tra	14
2.6.3 Extinción generada por procesos físicos ...	15
2.6.4 Extinción debida a la autoionización	15
2.6.5 Extinción por efecto de pared	18
2.7 Corrección de la extinción debida a efectos quí- micos	20
2.7.1 Método del patrón interno	20
2.7.2 Método de relación de canales	21
2.7.3 Método de calibración externa	22
2.8 Factor de mérito intrínseco	24

III. METODOS DE CALCULO PARA OBTENER LA EFICIENCIA DE DETECCION	30
3.1 Introducci3n	30
3.2 Eficiencia de detecci3n de emisores beta puros ..	30
3.2.1 C3lculo del espectro beta	31
3.2.2 Aplicaci3n del m3todo de Monte Carlo al estudio del efecto de pared	34
3.2.3 C3lculo de la extinci3n por autoionizaci3n	35
3.2.4 C3lculo de la eficiencia de detecci3n	39
3.2.5 Descripci3n del programa de c3lculo	45
3.3 Eficiencia de detecci3n en los procesos de captu- ra electr3nica pura	46
3.3.1 C3lculo de la probabilidad de interacci3n de los rayos X con el l3quido centellea- dor	47
3.3.2 C3lculo de la eficiencia de detecci3n	49
3.4 Eficiencia de detecci3n de transiciones nuclea- res que presentan conversi3n interna	53
3.4.1 Transiciones isom3ricas simples	54
3.4.2 Transiciones isom3ricas dobles	60
3.5 Eficiencia de detecci3n de emisores beta simples en equilibrio radiactivo	63
3.6 Eficiencia de emisores beta-gamma	64
3.6.1 Emisi3n beta-gamma retardada	65
3.6.2 Emisi3n beta-gamma en coincidencia	66
3.6.3 Emisi3n beta compleja	67

3.7	Eficiencia de detección en los procesos de captura electrónica seguida de emisión gamma	71
3.7.1	Caso de transiciones gamma simples	71
3.7.2	Caso de transiciones gamma dobles	74
3.7.3	Caso de transiciones gamma múltiples	77
3.8	Eficiencia de detección para esquemas de desintegración complejos	78
IV.	DISPOSITIVO EXPERIMENTAL	82
4.1	Reactivos químicos y centelleadores: PPO, dimitil, POPOP, Insta-Gel.....	82
4.2	Métodos de preparación de muestras	84
4.3	Equipos de medida	86
4.4	Precauciones experimentales	87
V.	RESULTADOS Y DISCUSION	89
5.1	Emisores beta simples	89
5.1.1	Tritio	89
5.1.2	Carbono-14	101
5.1.3	Azufre-35	110
5.1.4	Tecnecio-99	117
5.1.5	Wolframio-185	122
5.1.6	Cloro-36	126
5.1.7	Talio-204	131
5.1.8	Estroncio-89	136
5.1.9	Fósforo-32	141

5.2 Emisores beta-gamma	151
5.2.1 Mercurio-203	151
5.2.2 Cobalto-60	156
5.3 Emisores beta en equilibrio radiactivo	161
5.3.1 Estroncio-90 e Itrio-90	162
5.3.2 Cerio-144 y Praseodimio-144	167
5.4 Nucleidos que se desintegran por C.E.	174
5.4.1 Hierro-55	175
5.4.2 Manganeso-54	181
5.4.3 Estroncio-85	189
5.4.4 Yodo-125	195
5.4.5 Cerio-139	201
5.5 Nucleidos con formas complejas de desintegración .	207
5.5.1 Cesio-137	208
5.5.2 Zinc-65	214
5.5.3 Sodio-22	220
VI. CONCLUSIONES	226
VII. APENDICES	230
7.1 Apéndice A.- Criterios seguidos en la evaluación de errores	230
7.2 Apéndice B.- Consideraciones acerca de las fórmulas de Swank y Tissen	235
7.3 Apéndice C.- Programas de cálculo	238
VIII. BIBLIOGRAFIA	262

I. INTRODUCCION

En 1947, Kallmann demostró que los compuestos aromáticos, al disolverse ciertos solutos, presentaban una elevada eficiencia de centelleo para la radiación nuclear.

En 1950 se publican cuatro trabajos (Hofstadter y col., Reynolds y col. Kallmann y Ageno y col.) que muestran claramente que una solución orgánica, aprovechando sus propiedades centelleadoras, puede emplearse como contador. Merece una especial mención el trabajo de Reynolds y colaboradores, ya que fueron los primeros en situar dos fotomultiplicadores en coincidencia, para disminuir el ruido y en utilizar, además, un equipo de recuento digital.

El primer prototipo de contador de centelleo lo desarrollaron, independientemente, Hierbert y Watts 1953, en Los Alamos, y Arnold 1954, en la Universidad de Chicago. Siguiendo el diseño de Hierbert y Watts, Packard comercializó el primer contador de centelleo líquido que se instaló en el Argon Cancer Research Hospital de la Universidad de Chicago.

La eficiencia de detección de estos contadores, para emisores beta de débil energía tal como el tritio, era solo de unos pocos por ciento ($<10\%$) mas las sucesivas mejoras en el rendimiento cuántico de los fotocatodos han incrementado notablemente la eficiencia. En la actualidad, las muestras de tritio sin extinción se pueden medir con eficiencias del orden del 65% y las de carbono catorce pueden alcanzar más del 90%.

Al progreso en los equipos ha correspondido, paralelamente, una mejora en los centelleadores, debida, fundamentalmente, a un mejor conocimiento de los mecanismos que rigen el proceso de centelleo (King y Voltz 1966).

Se debe a Belcher 1953, la primera discusión acerca de la calibración absoluta de emisores beta mediante centelleo líquido; los errores, imputa-

bles a la extrapolación, eran del orden del 40%, para energías de 300 keV. A este trabajo siguieron otros: Steyn 1956, que aplica la técnica de coincidencia centelleo líquido-NaI(Tl) a la medida $4\pi\beta - \gamma$; y Flynn y Glendenin 1959, que consiguen realizar medidas $4\pi\beta$ con una precisión del orden del 2%, para nucleidos de energías altas y medias. La misma técnica emplean también: Hellstroen 1961; Wangermann 1962; Zollfrank y Reidel 1963; Burgmann 1965; Goldstein 1965; Garfinkel y col. 1965; Horrocks y col. 1962; Ryves - 1960. Una excelente revisión de la exactitud del recuento $4\pi\beta$ mediante centelleo líquido fué llevada a cabo por Vaninbrouckx y Spornol en 1965.

Un enfoque distinto del problema consiste en calcular teóricamente la probabilidad de que una partícula que interacciona con el líquido de centelleo no genere un impulso eléctrico a la salida del detector (probabilidad de no detección) (Luckens Jr. 1961). El primer trabajo de este tipo se debe a Horrocks y Studier 1961, que obtienen la relación entre las probabilidades de detección para un sistema detector cuando trabaja con un solo tubo, y con dos en coincidencia. Sin embargo, la expresión utilizada no es correcta, como señalé posteriormente Jordan 1971.

En 1971, Gibson mejora el método de cálculo de Horrocks y Studier y revisa, además, los métodos de calibración absoluta utilizados en centelleo líquido. Por otra parte, Korolov, Le Gallic y Vatin 1970 proponen un método basado en cuatro recuentos, que según los autores permitiría obtener precisiones de $\pm 0,6\%$ y $\pm 0,05\%$ para el ^3H y el ^{14}C , respectivamente. Sin embargo, hasta el presente no han publicado ningún resultado experimental obtenido con dicho método.

En lo que se refiere a la captura electrónica, Horrocks 1971 sugiere - que el ^{55}Fe puede medirse con una eficiencia de hasta el 90%. Gibson y Marshall 1972 demuestran que con los equipos más modernos, la eficiencia no puede ser superior al 64% en el caso del ^{55}Fe y del 67% en el del ^3H .

Para la determinación experimental de la probabilidad mínima de detec-

ción, Flynn y col. 1971 utilizan una serie de filtros ópticos con los que obtienen una serie de curvas que convergen al valor de la actividad de la muestra. Una variante de este método consiste en situar una fuente gamma, exterior al recipiente de medida, y determinar la posición espectral del límite Compton y la tasa de cuenta de una muestra, a la que se le han añadido cantidades crecientes de extintor. Si se define el "umbral relativo de detección" como la relación entre la posición de los límites Compton de la muestra extinguida y sin extinguir, y se extrapola la tasa de cuenta a umbral relativo de detección cero, se obtiene la actividad de la muestra de forma absoluta (Grau y col. 1975, Horrocks 1976).

Todos estos métodos permiten calibrar una muestra, siempre que su extinción (atenuación del destello luminoso) sea despreciable. Este, sin embargo, no es el caso en la mayoría de las mediciones que se presentan en la práctica, donde la extinción de las muestras es variable y raramente nula.

En general, para conocer la actividad de una muestra se precisará calibrar anteriormente el equipo de medida. El procedimiento más recomendable, desde el punto de vista práctico, consiste en preparar una serie de muestras de actividad conocida y de extinción distinta. Los resultados de las medidas de estas muestras permiten calcular la curva de calibración que relaciona la eficiencia de recuento con la extinción.

Es importante señalar que, cada vez que se cambie de nucleído o que se modifique la composición del líquido de centelleo, se deberá repetir el proceso antes descrito a fin de obtener una nueva curva de calibración.

En la presente memoria se describe la forma de obtener la curva de calibración de cualquier nucleído beta. La técnica es aplicable a cualquier espectrómetro de centelleo líquido dotado de amplificador logarítmico, sin más que conocer la curva de calibración del ^3H para el centelleador considerado, y disponer de las tablas calculadas en la memoria.

Dado que la literatura sobre los procesos básicos es muy especializada

y los trabajos en los que se describen los fundamentos de la técnica de calibración por centelleo líquido son incompletos, o contienen en algunos casos errores conceptualmente importantes, se ha dedicado un capítulo que, - con el título de Fenomenología, pretende ser una revisión suficiente, crítica y, en algunos puntos, original, sobre el tema.

Se hace una descripción detallada de los métodos de cálculo utilizados y se incluyen como apéndices los programas de cálculo.

Finalmente, se describe el método experimental, así como los resultados de las medidas de 20 nucleidos, señalando, en cada uno de ellos, la concordancia entre los resultados experimentales y los teóricos, los errores - previsibles y las dificultades encontradas en la preparación de las muestras. Se han ensayado tanto emisores beta como nucleidos que se desintegran por captura electrónica. Y en ambos casos se han considerado tanto los nucleidos que experimentan desintegración beta pura como aquellos en los que, a la desintegración beta, les sigue una o varias transiciones gamma que presentan con mayor o menor grado el fenómeno de la conversión interna.

II. FENOMENOLOGIA

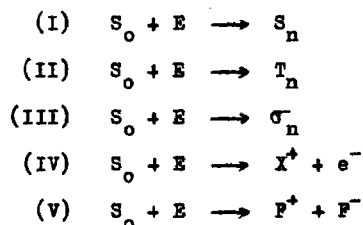
2.1 INTERACCION DE PARTICULAS CARGADAS CON EL LIQUIDO DE CENTELLEO

Las partículas cargadas, al desplazarse en el seno de un líquido, interaccionan con las moléculas del medio que encuentran en su recorrido. Como resultado de esta interacción, las partículas cargadas pierden energía cinética y algunas moléculas del medio sufren transformaciones tales como ionización, formación de radicales libres, excitación, rotura en fragmentos neutros o ionizados, etc.

Dependiendo de su concentración, las moléculas ionizadas y las excitadas originarán diferentes tipos de reacciones químicas: descomposición, neutralización, formación de radicales libres y creación de excímeros, principalmente; o, también, ocasionarán ciertos procesos físicos tales como fluorescencia, emisión de rayos X blandos, migración o transferencia de energía, desexcitación no radiactiva, etc. Hay que señalar que la mayor parte de la energía cinética de la partícula se degradará a energía térmica y sólo una fracción muy pequeña de dicha energía cinética generará fotones luminosos.

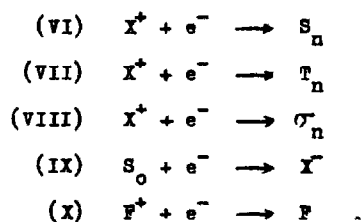
La excitación molecular y la ionización son los procesos que más contribuyen a la producción de luz. La generación de iones se debe, principalmente a dos causas distintas: al choque directo de un electrón (proyectil) con otro electrón de una molécula, o a la excitación de una molécula con una energía superior a su potencial de ionización.

En el caso particular de un líquido de centelleo simple, formado por un disolvente X, un soluto primario Y y un soluto secundario Z, la interacción de una partícula cargada y dotada de una energía cinética E originará la excitación de estados electrónicos $\Pi(S_n, T_n)$, la excitación de estados electrónicos $\sigma(\sigma_n)$, la producción de iones moleculares (X^+) o la generación de radicales libres (F^+, F^-). Todos estos sucesos se pueden esquematizar como sigue:

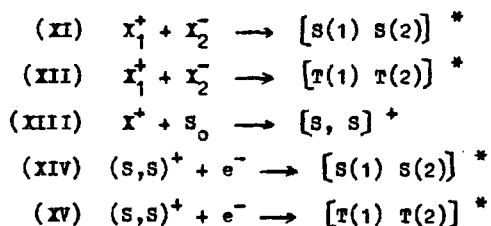


Un estudio cuantitativo de las anteriores reacciones permite concluir (Birks 1964) que la probabilidad de excitación (I, II, III) es del mismo orden de magnitud que la probabilidad de ionización (IV, V). En lo que a la excitación se refiere, puesto que el 14% de los electrones de una molécula aromática son π , el evento (III) es mucho más probable que el (I) y el (II).

Los electrones lentos (rayos δ) emitidos en el proceso (IV) pueden generar las siguientes reacciones:



Por último, los iones moleculares (IV, IX) pueden engendrar dímeros según los siguientes esquemas:



Cuando en las interacciones se pueden producir moléculas excitadas en el estado singlete (S_n) o en el estado triplete (T_n), la relación entre ambas especies moleculares será de uno a tres, debido al factor de peso. Esto ocurre en las reacciones (I) y (II), (VI) y (VII), (XI) y (XII) y también en las (XIV) y (XV).

La componente rápida de centelleo se debe a las moléculas y dímeros excitados en el estado singlete -reacciones (I), (VI), (XI) y (XIV)-, mientras que las mismas especies en estado triplete -reacciones (II), (VII), (XII) y (XV)- son las responsables de la componente lenta. Los restantes procesos -el (III), (V), (VIII) y (X)- son de naturaleza no radiativa y la disipación de energía se produce en forma térmica.

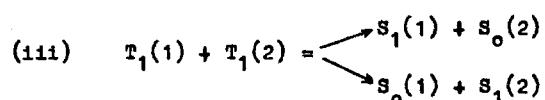
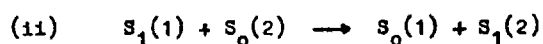
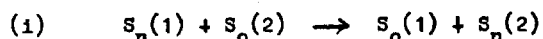
Un balance de todos los eventos mencionados anteriormente permite concluir que el diez por ciento, como máximo, de la energía cinética de un electrón que interacciona con el centelleador contribuye a la producción de singletes excitados (S_n y $(S,S)^*$).

2.2 TRANSFERENCIA ENERGETICA DISOLVENTE-DISOLVENTE

Puesto que la concentración de moléculas del scito es relativamente baja en los centelleadores ordinarios, resulta muy improbable que una molécula excitada del disolvente pueda transferir directamente su energía a una de scito. Es necesario admitir, pues, una transferencia energética entre moléculas próximas del propio disolvente.

En la actualidad, dos teorías compiten en la descripción del mecanismo de transferencia energética entre moléculas del disolvente; y ambas explican correctamente los resultados experimentales obtenidos hasta el presente.

Voltz y col. 1963 propusieron una teoría basada en la migración de la energía de excitación desde una molécula a alguna de sus vecinas. Las reacciones que describen el proceso son las siguientes:

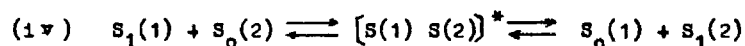


En el esquema (i), el símbolo $S_n(1)$ indica que la molécula X(1) se encuentra en estado singlete y en el nivel de excitación "n". Cuando el estado singlete excitado es el primero se representa con el subíndice 1 y cuando es el fundamental con el subíndice cero.

La reacción (ii) se suponía que era la única forma de transferencia energética entre las moléculas del disolvente. Se debe a Laustriat y col. 1970 y a Horrocks 1972 la demostración experimental de que la probabilidad del proceso (i) es significativa. El hecho de que la vida media de una molécula altamente excitada sea del orden de 10^{-12} s, inducía a pensar que solamente podía sufrir procesos intramoleculares: ionización, isomerización, disociación en radicales libres, procesos internos de paso al primer nivel excitado, etc.

En el esquema (iii) se representa la aniquilación triplete-triplete. La interacción de un par (T_n, T_n) es relativamente menos probable.

La otra teoría, elaborada por Birks 1966, 1971, se basa en la transferencia de energía mediante la formación de dímeros excitados (excímeros). Las reacciones de equilibrio que rigen el proceso son las siguientes:



La formación de excímeros y su ruptura se realiza muchas veces y permite que la energía se transfiera a una distancia grande, comparada con el diámetro molecular. Tanto en la formación como en la disociación de los excímeros, se supone que no hay pérdidas de energía.

En la teoría de Birks se admite que todas las moléculas excitadas que participan en la transferencia energética se encuentran en el primer estado singlete. En la teoría de Voltz, en cambio, las moléculas excitadas pueden hallarse en el primer estado singlete, en el n -ésimo estado singlete o, incluso, en un estado ionizado, X^+ .

Klein 1968 ha dado una descripción de la transferencia de energía, basada en un análisis de los procesos elementales y que implica tanto la difusión como la formación y disociación de excímeros.

2.3 TRANSFERENCIA ENERGETICA DISOLVENTE-SOLUTO

En la transferencia energética entre el disolvente y el soluto no se produce ningún tipo de emisión fotónica. Esta afirmación se basa en el hecho de que la transferencia energética disolvente-soluto requiere, por término medio, tiempos del orden de 10^{-11} s, mientras que la emisión de un fotón, por el disolvente, ocurre con un tiempo de desexcitación del orden de 10^{-8} s.

Como la concentración de las moléculas del soluto es relativamente baja -de 3 a 10 g de soluto por litro de disolvente-, no resulta probable que la transferencia energética se produzca por contacto directo de las moléculas (Birks 1961). Y, sin embargo, la transferencia energética entre las moléculas excitadas del disolvente y las del soluto es cuantitativa. Parece, pues, altamente probable que la transferencia energética sea un proceso resonante.

Se ha comprobado experimentalmente que la intensidad de la interacción entre los dipolos de las moléculas del disolvente y del soluto, está relacionada con el grado de solapamiento entre el espectro de emisión del disolvente y el de absorción del soluto; y, además, que la distancia media de transferencia energética es función del coeficiente de extinción del soluto en la zona de solapamiento espectral (Berlman 1965).

Foster 1960, desarrolló una teoría basada en la interacción de los di-

polos de las moléculas, que se supone se encuentran en el primer estado excitado. Aunque la teoría de Foster explica aceptablemente los hechos experimentales mencionados más arriba, Horrocks 1972 y Laustriat y col. 1970 han demostrado experimentalmente que a concentraciones elevadas del soluto ($>> 10 \text{ g/dm}^3$), la transferencia energética se efectúa mediante moléculas excitadas en estados singlete, superiores al primer estado excitado, $^1Y^{**}$. La eficiencia, en estas condiciones, no depende del tipo de hidrocarburo aromático que actúe de disolvente y es el orden del 100% (Berlman 1960, Lipsky y col. 1959).

2.4 TRANSFERENCIA ENERGETICA SOLUTO-SOLUTO

En un líquido de centelleo compuesto por un disolvente, X, un centelleador primario, Y, y un centelleador secundario, Z, la función del centelleador secundario es desplazar el espectro de fluorescencia del centelleador primario hacia longitudes de onda más largas. Este efecto permite minimizar la autoabsorción, adaptar mejor el espectro de fluorescencia a la respuesta del fotocatodo y disminuir la absorción del destello en muestras coloreadas.

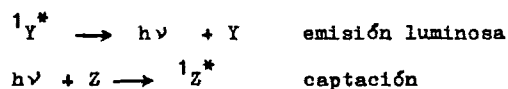
La absorción, por parte, del disolvente puede ser importante para grandes volúmenes de centelleador; pero, en el caso de volúmenes reducidos -menos de 20 cm^3 - dicha autoabsorción es despreciable.

La adaptación espectral, por medio de un centelleador secundario, era primordial en los primitivos fotocatodos, incluso para el S-11, por ejemplo; pero los actuales fotocatodos bialcalinos presentan un máximo de sensibilidad entre 380 y 390 nm, que coincide con el máximo del espectro de fluorescencia de los centelleadores primarios más utilizados (PPD y butil-PHD). Por consiguiente, la adición de un centelleador secundario -dimetil-POPOP, por ejemplo- resulta superfluo en la mayoría de los casos. Así pues, sólo en el caso de muestras coloreadas se manifiesta claramente ventajosa la adición de un centelleador secundario.

La captación de energía por parte del centelleador secundario se puede efectuar, ya por transferencia directa del disolvente, ya por radiación del centelleador secundario o bien por transferencia del centelleador primario.

La transferencia directa del disolvente al soluto secundario ($X \rightarrow Z$) es un proceso análogo al $X \rightarrow Y$, aunque menos probable: la concentración de Z, menos de $0,5 \text{ g/dm}^3$, es inferior a la de Y, del orden de 5 g/dm^3 .

En la transferencia radiativa, el centelleador primario emite fotones de fluorescencia que son, en su mayor parte, absorbidos por el centelleador secundario antes de que puedan escapar de la solución. El proceso acontece en dos fases:



Finalmente, la transferencia no radiativa (${}^1Y^* \rightarrow Z$) del centelleador primario al secundario es competitiva cuando la concentración del centelleador secundario es elevada, situación poco frecuente en la calibración de muestras.

2.5 FLUORESCENCIA DEL SOLUTO

Con el término fluorescencia se designará la emisión fotónica debida a la desexcitación de moléculas en estado singlete -generalmente en el primer estado excitado-. Y se denominará fosforescencia a la emisión luminosa procedente de la desexcitación de moléculas en estado triplete.

Si con S_{nm} se simboliza el estado singlete S en el nivel electrónico n y subnivel vibracional m de una molécula, la transición $S_{10} \rightarrow S_{00}$ corresponderá a la energía máxima del espectro de fluorescencia. Y si n es el subnivel superior de vibración que corresponde al nivel electrónico cero, o sea, S_{0n} , la energía mínima de fluorescencia corresponderá a la transición

$S_{10} \rightarrow S_{on}$. Por lo tanto, el espectro de fluorescencia está constituido - por una amplia banda de energías comprendidas entre los valores antes señalados. Hay que añadir que tanto las transiciones $S_{om} \rightarrow S_{oo}$ ($m = 1, 2, \dots, n$) como las $S_{nm} \rightarrow S_{no}$ (para cualquier n) son no radiativas, lo mismo que las transiciones atómicas por conversión interna o de un estado singlete a otro triplete, o viceversa, de igual nivel energético.

La presencia en el espectro de líneas con distintas amplitudes se debe a que las transiciones desde el nivel S_{10} a algunos de los niveles de vibración S_{om} , correspondientes al nivel electrónico fundamental, son más probables o están menos prohibidas que otras.

2.6 EXTINCIÓN DE LA EMISIÓN LUMINOSA

El término extinción corresponde al vocablo inglés "quenching" y hace referencia a la atenuación del destello luminoso, debido a que no toda la - energía cinética de la partícula puede contribuir a la emisión luminosa. La palabra "interceptación" nos parece más correcta y, además, define de forma más clara el fenómeno. A pesar de no estar de acuerdo con el término extinción, lo conservaremos en la presente memoria puesto que ha arraigado entre los investigadores.

Habitualmente, se distinguen tres tipos de extinción: química, por color y física -denominaciones, por cierto, bastante desafortunadas-. Por - ejemplo, se considera como extinción química la debida a los efectos de dilución o concentración, que son más bien físicos. Se califica de extinción física la microcristalización de las sales radiactivas la cual, generalmente, responde a una reacción química. Aunque se respetará esta clasificación no se admitirán sólo tres tipos de extinción, sino cinco: química, por color, física, por autoionización y por efecto de pared. De hecho, al considerar un nucleído determinado, la variación en la eficiencia de detección se debe a uno de los tres primeros tipos de extinción mencionados antes. La si

tuación cambia si, como se pretende en esta memoria, se relaciona la extinción entre diferentes nucleidos.

2.6.1 Extinción debida a efectos químicos

Se engloba con esta denominación un conjunto de fenómenos dispares cuya característica común es que se producen antes de la emisión del destello luminoso y, normalmente, se manifiestan como una reducción del número de fotones emitidos por centelleo. La extinción química se clasifica en cinco categorías: extinción por acidez, extinción dipolo-dipolo, extinción por dilución, extinción por concentración y extinción por captura de electrones secundarios.

La extinción por acidez se manifiesta al incorporar sustancias ácidas al líquido centelleador. Los protones pueden, en estas circunstancias, interaccionar con el soluto primario o secundario, los cuales se comportan - como bases orgánicas. El protón modifica los estados posibles de excitación de los solutos, perturbando, de este modo, la transferencia energética disolvente soluto. Se puede afirmar que todos los ácidos, en mayor o menor - grado, originan este tipo de extinción.

La extinción dipolo-dipolo se produce cuando la energía del disolvente S₁, se transfiere, por resonancia, a moléculas extrañas al soluto centellea dor. La desexcitación molecular ocurre mediante procesos de vibración y, - por tanto, no radiativos. El oxígeno y el nitrometano son ejemplos de tales impurezas.

La extinción por dilución es la consecuencia de aumentar la separación media entre las moléculas del disolvente, reduciéndose con ello la probabi lidad de transferencia energética. La sustancia diluyente será siempre un - compuesto no aromático.

La extinción por concentración puede manifestarse cuando uno de los -

componentes de la solución centelleadora, generalmente el soluto primario, alcanza concentraciones elevadas (más de 10 g/l, en el caso del PPO). El proceso de autoextinción, en la transferencia soluto-soluto, se debe a que una molécula excitada $^1Y^*$, en el estado S_{10} , comparte su energía con otra molécula Y, en el estado S_{00} . Cuando se separan, cada una de ellas posee cierta cantidad de energía, inferior a la del primer estado electrónico excitado, que disipan como energía de vibración. La emisión es no radiativa y por lo tanto, no contribuirá al destello luminoso.

Finalmente, la extinción por captura de electrones secundarios tiene lugar cuando se incorporan al centelleador sustancias con elevada afinidad electrónica; éstas absorben los electrones secundarios producidos en la interacción de la radiación primaria con el disolvente.

2.6.2 Extinción producida por el color de la muestra

Aunque el líquido de centelleo es incoloro, la adición de ciertas sustancias, incluso en pequeña proporción, es suficiente para colorearlo y producir extinción. El efecto del color en la muestra, frente a los fotones emitidos por las moléculas del soluto centelleador, es similar a la atenuación luminosa que produciría un filtro cromático. Las principales variables que rigen esta forma de extinción son: la absorbancia de la molécula extintora, la concentración del cromóforo y la longitud que debe recorrer el fotón dentro del líquido antes de ser detectado.

Si se comparan las distribuciones de las amplitudes de los impulsos, debidos a un emisor beta, de dos soluciones, una con extinción química y la otra con extinción por color, se observa que el primero es más alto y estrecho que el segundo, y que esta diferencia es tanto mayor cuanto más elevada es la energía máxima del nucleido. Estas diferencias han sido explicadas cualitativamente por Neary y Budd 1970, y por ten Haaf 1972.

2.6.3 Extinción generada por procesos físicos

Con esta expresión se designa todo proceso en el cual la partícula - pierde parte de su energía antes de interaccionar con el líquido centelleador.

Los principales fenómenos que conducen a esta forma de extinción son: la autoabsorción por precipitación o microcristalización de la muestra; la adsorción de átomos radiactivos en las paredes del frasco de centelleo; la formación de fases en el seno del centelleador por mala solubilidad; y, por último, la absorción, tanto en líquidos como en sólidos: tiras de papel, - filtros ...

2.6.4 Extinción debida a la autoionización

La extinción por autoionización está ligada a las moléculas excitadas del disolvente y se manifiesta en aquellas partes del líquido donde la concentración local de moléculas excitadas es elevada. Tanto las moléculas excitadas en su primer estado singlete o excitones, S_1 , como las excitadas en estados singletes superiores, S_n , pueden contribuir al proceso de autoionización.

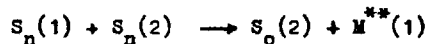
Cuando dos excitones se hallan suficientemente próximos, es altamente probable que se produzcan las reacciones:



en las cuales una de las moléculas se encuentra en el estado fundamental, - mientras que la otra se halla en un estado superexcitado, M^{**} . Los estados superexcitados son estados ligados cuya energía es superior a la del primer nivel de ionización. Por consiguiente, la autoionización competirá con la -

disociación y con la conversión interna hacia los niveles electrónicos más bajos (Jesse 1964).

Todo lo dicho anteriormente es válido también en el caso de estados excitados singletes, superiores, S_n ... Aquí las reacciones serán las siguientes:



El resultado en ambas situaciones es una pérdida de moléculas excitadas y, por consiguiente, una disminución en la intensidad del destello luminoso generado por la partícula incidente.

En general, la respuesta, $L(E)$, de un líquido de centelleo a una partícula ionizante es una función no lineal de la energía cinética, E , tanto menos lineal cuanto más ionizante es la partícula. Consecuentemente, las partículas beta de baja energía sufrirán una mayor autoextinción que las más energéticas. En 1951 Birks formuló un modelo semiempírico y propuso como expresión para la fluorescencia específica (número de fotones emitidos por unidad de longitud) dL/dx , la siguiente:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\eta_0 \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (2.6.1)$$

en la que dE/dx es el poder de frenado, $B \frac{dE}{dx}$ representa el número de centros de extinción producidos por unidad de longitud; la fluorescencia específica en ausencia de autoionización es:

$$\frac{dL}{dx} = \eta_0 \frac{dE}{dx} \quad (2.6.2)$$

ya que $(1 + kB \frac{dE}{dx})^{-1}$ es el factor de reducción debido a la autoionización, en el que kB es el parámetro de autoionización.

Integrando la ecuación (2.6.2) se obtiene:

$$L = \gamma_0 \int_0^R \frac{dE}{dx} dx = \gamma_0 \int_0^E dE = \gamma_0 E \quad (2.6.3)$$

donde $\gamma_0 = L/E$ es el factor de mérito de centelleo cuando dE/dx tiende a cero (por ejemplo, para partículas beta de elevada energía > 1 MeV) o más correctamente cuando $kB \frac{dE}{dx}$ es despreciable frente a 1.

En el caso general de la expresión (2.6.1) se tendrá:

$$L(E) = \gamma_0 \int_0^E \frac{dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}} = \gamma_0 E X(E) \quad (2.6.4)$$

en la que

$$X(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \frac{dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (2.6.5)$$

El factor de mérito de centelleo, en este caso, será:

$$\gamma(E) = \frac{L(E)}{E} = \gamma_0 X(E) \quad (2.6.6)$$

Esta expresión es de gran interés, puesto que permite descomponer el factor de mérito en dos términos: uno independiente de la energía, γ_0 , y otra función de la energía pero adimensional, $X(E)$. Este último, calculable mediante la expresión (2.6.5), se denominará función de autoionización.

El cálculo de $X(E)$ plantea dos problemas; uno es la elección del valor de kB , Graun y col. 1970 -siguiendo a Gibson tomaremos $kB = 9 \text{ mg cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1}$;

otro es el valor de dE/dx cuando E es menor de 10 keV. Para energías superiores a 10 keV existen tablas (Nelms 1956, 1958 y Berger y col. 1964) que permiten obtener dE/dx con buena precisión; para valores inferiores se han tomado los datos experimentales y para $E < 400$ eV se ha recurrido a la expresión de Marshall y col. 1970.

Además de la fórmula (2.6.1) de Birks 1951, otros autores han introducido fórmulas distintas. Una relación modificada, que incluye los efectos de la extinción hasta el segundo orden de dE/dx , fué propuesta por Chou 1952:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\eta_0 \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx}\right)^2} \quad (2.6.7)$$

Esta ecuación se aplica al estudio de la luminiscencia debida a partículas pesadas. Una tercera fórmula ha sido aplicada por Wright 1953 a:

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\eta_0}{2kB \frac{dE}{dx}} \ln(1 + 2kB \frac{dE}{dx}) \quad (2.6.8)$$

Finalmente, Voltz 1969 propuso una expresión de la forma:

$$\frac{dL}{dx} = \eta_0 \frac{dE}{dx} \exp \left\{ - kB \frac{dE}{dx} \right\} \quad (2.6.9)$$

En la presente memoria se adoptará la fórmula (2.6.1) debida a Birks por ser la que más se ha contrastado con datos experimentales. Tanto la fórmula (2.6.8) como la (2.6.9) se reducen a la (2.6.1) si se desarrollan en serie y se limita el desarrollo en los términos de segundo orden.

2.6.5 Extinción por efecto de pared

Cuando el alcance máximo de las partículas beta es del mismo orden que

las dimensiones del detector, algunas partículas solo cederán al líquido - centelleador una fracción de su energía cinética. Este efecto, denominado - extinción por efecto de pared, se manifestará, en el caso de emisores beta, en una degradación del espectro de la energía depositada por las partículas (EDP).

En la fig. 1 se ha representado el espectro beta del ^{32}P , en línea - continua, y el espectro de E.D.P. en el caso de un detector de 1,1 cm de - diámetro y 3 cm³ de volumen centelleador (línea discontinua).

La degradación del espectro se traducirá en una disminución de la eficiencia de detección, tanto más notable cuanto mayor sea la extinción, para una energía dada.

Si, por ejemplo, una partícula beta de 1 MeV de energía cinética sólo deposita en el detector 10 keV de su energía total, la probabilidad de detección es del 95% para un factor de mérito de 1 keV/electrón (extinción débil) mientras que si la figura de mérito es de 5 keV/electrón (extinción fuerte) la probabilidad de detección es sólo del 26%.

En la práctica, el efecto de pared es despreciable para emisiones beta con una energía máxima de 500 keV, pero alcanza hasta el cinco por ciento - para energías más elevadas, caso del ^{32}P , por ejemplo, cuya $E_{\text{max}} = 1720 \text{ keV}$.

Benjamin y col.1962 dedujeron una fórmula que da la fracción de energía depositada dentro de un cilindro de radio r y altura h. Si se designa - por R(E) el alcance de un electrón de energía E, la fracción de energía depositada será:

$$W(E) = 1 - C,5 \left(\frac{1}{r} + \frac{1}{h} \right) R(E) \quad (2.6.10)$$

En la presente memoria se ha seguido el método de Monte Carlo para calcular la EDP.

2.7 CORRECCION DE LA EXTINCION DEBIDA A EFECTOS QUIMICOS

El hecho experimental de que pequeñas cantidades de ciertas sustancias produzcan intensos efectos de extinción dificulta la preparación de muestras exentas de este enojoso efecto, que está íntimamente relacionado con la eficiencia de detección. Todo incremento de la extinción se traduce en una disminución de la eficiencia, que depende de la energía de las partículas y de la composición del centelleador.

Si se calibra un determinado nucleido, sólo la extinción química, la debida al color y la física, afectarán a la variación relativa de la eficiencia. Mientras que la extinción por autoionización y por el efecto de la pared deberán tenerse en cuenta cuando se comparan las eficiencias de distintos radionucleidos.

En la práctica, la extinción física responde siempre a una inadecuada preparación de la muestra; más que corregirla, lo que se procura es evitarla mediante una preparación correcta, generalmente eligiendo el centelleador adecuado. La extinción por color, si es muy intensa, se eliminará, en la mayoría de los casos, aplicando métodos de decoloración. La extinción química, al contrario de las dos anteriores, resulta inevitable e incontrolable la mayor parte de las veces. En general, se recurre a alguno de los métodos de corrección conocidos: calibración interna, relación de canales, calibración externa o a métodos electrónicos, en el caso de extinciones débiles.

2.7.1 Método del patrón interno

El método del patrón interno o de calibración interna fué el primero que se utilizó para determinar la eficiencia de recuento de una muestra extinguida (Hayes 1956; Okita y col. 1956 y Davidson y col. 1957). Se basa en este método en la hipótesis de que una muestra extinguida presentará la misma

eficiencia antes y después de añadirle un patrón sin capacidad extintora. - El método operativo consiste en medir inicialmente la muestra problema, - agregarle después el patrón de actividad conocida y repetir la medida. La - eficiencia de la muestra primitiva se obtendrá calculando la relación entre la diferencia de las tasas de recuento, antes y después de incorporar el patrón radiactivo, y la actividad añadida. La exactitud de este método depende de la exactitud del patrón utilizado, siempre que se cumplan ciertas condiciones (Grau y col. 1976).

2.7.2 Método de la relación de canales

Baillie 1960 y Bush 1963 introdujeron un método basado en el hecho de que la extinción produce un desplazamiento en el espectro de las amplitudes de los impulsos.

Si se ajusta una ventana de discriminación de manera que abarque todo el espectro, de una muestra sin extinción, y una segunda ventana que discrimine solamente la parte del espectro correspondiente a la región de impulsos de mayor altura, la relación entre los recuentos en ambas ventanas será constante para las muestras con igual extinción y variará cuando la extinción sea distinta.

A partir de los recuentos obtenidos con una serie de patrones de igual actividad y distinta extinción se puede dibujar una curva de calibración - que ligue la eficiencia de recuento con la relación entre los recuentos en las dos ventanas. Esta curva permite obtener la eficiencia con que se miden las muestras del isótopo en cuestión, sin más que determinar su relación de canales y entrar, con el valor obtenido, en la curva.

Este método tiene el inconveniente de ser muy poco preciso en el caso de nucleidos con energías bajas: tritio, por ejemplo, ya que el desplazamiento del espectro en función de la extinción es tanto menor cuanto más ba

ja sea la energía de las partículas.

2.7.3 Método de calibración externa

En este método se aprovecha la interacción de los fotones gamma emitidos por una fuente exterior al frasco de centelleo. Una fracción de los fotones incidentes en el frasco interacciona por efecto Compton con la pared del recipiente y con el líquido centelleador. El espectro de electrones Compton es continuo, de modo que se generan electrones con energías cinéticas comprendidas entre cero y un valor máximo característico (límite Compton) que depende de las energías de los fotones gamma.

La extinción altera la distribución de las amplitudes de los impulsos producidos por los electrones Compton, así como la debida a las partículas de un emisor beta. La finalidad de inducir un espectro Compton no es la de simular un espectro beta, sino simplemente permitir la cuantificación de la extinción. De hecho la extinción actúa de forma distinta sobre los emisores beta débiles que sobre los energéticos. La distribución de las amplitudes de los impulsos de un emisor beta de energía elevada, ^{32}P por ejemplo, sufre una fuerte perturbación en las amplitudes cuando la extinción es elevada, sin que ello afecte notablemente al número de impulsos contados, o sea, al área de la distribución. Todo ello se refleja en un desplazamiento del espectro hacia las bajas amplitudes. En cambio, en el caso de emisores beta débiles, el desplazamiento espectral es despreciable y la extinción sólo se traduce en una disminución del área del espectro.

Todo ello induce, erróneamente, a algunos autores (Peng 1970 y Kobayashi 1974) a afirmar que la diferencia entre las distribuciones beta y Compton se traduce en una degradación de la exactitud del método y recomiendan el uso del ^{133}Ba como fuente gamma de calibración externa, debido a que la energía gamma de los fotones emitidos por este nucleido es suficientemente baja (inferior a 400 keV) para que su espectro Compton simule aceptable-

mente el espectro beta de los emisores beta débiles.

En la práctica se utiliza uno de los tres nucleidos siguientes: ^{133}Ba , ^{137}Cs y ^{226}Ra . De ellos el ^{133}Ba es el menos energético y el ^{226}Ra el más energético. Experimentalmente se observa que el ^{226}Ra es el nucleido idóneo como fuente gamma de calibración externa. La única ventaja que presenta la utilización del ^{133}Ba es la de requerir menos blindaje de aislamiento y, - por tanto, el empleo de este nucleido abarata el sistema. El principal inconveniente reside en el elevado solapamiento entre el espectro beta y el - Compton, con lo que la cuantificación de este último puede ser bastante imprecisa.

Al método de calibración externa algunos autores lo denominan "método de calibración externa por relación de canales" pues, en realidad, se aplica una relación de canales al espectro de electrones Compton. Sin embargo, en esta memoria se mantendrá, por brevedad, el término simple de "calibración externa".

En este método la magnitud que caracteriza el grado de extinción, Q , de una muestra se establece a partir del espectro debido a los electrones - Compton que penetran en el líquido centelleador. Para ello, basta elegir - dos ventanas, como se hizo en el apartado anterior, y registrar el recuento en las mismas. El valor de Q es el resultado de dividir el recuento neto - (debido exclusivamente a los electrones Compton) en ambas ventanas.

Si se dispone de un juego de muestras de igual actividad y distinta extinción, es decir, distinto Q , resulta posible establecer una curva de extinción que relacione la eficiencia de detección con la extinción Q . Es importante señalar que el parámetro Q caracteriza al líquido de centelleo y a su extintor y es independiente del nucleido que se haya incorporado. Mientras que la eficiencia depende tanto del nucleido como de la extinción. Así pues, para cada líquido de centelleo y cada nucleido es necesario obtener - una curva de calibración. En general, la curva de calibración se puede ajustar mediante una expresión polinómica que ligue la eficiencia con Q :

$$\varepsilon = a_1 Q^3 + a_2 Q^2 + a_3 Q + a_4 \quad (2.7.1)$$

El parámetro Q, que depende del equipo, de las ventanas de discriminación, del volumen de centelleador, de las paredes del frasco, etc., permite caracterizar el líquido de centelleo junto con sus impurezas y es independiente del nucleido que se incorpore o del estado de absorción del mismo. - Por lo tanto, este método permitirá corregir la extinción química y de color, pero no la extinción física, ya que es insensible a la absorción, precipitación, descomposición o adsorción del emisor beta incorporado.

Respecto a las afirmaciones de Peng 1970 y Kobayashi 1974 mencionadas al principio de este apartado, hay que señalar que a Q no se le puede atribuir otro significado que el de cuantificar la extinción del líquido mediante el artificio de "inyectarle" un espectro continuo de electrones. Y que - el efecto de la extinción se refleja en el nucleido beta incorporado variando su eficiencia de detección. La única condición que debe cumplirse es que la relación entre la eficiencia y el parámetro Q sea biunívoca y esto queda asegurado por la curva de calibración.

Se ha insistido ampliamente en clarificar el significado del parámetro Q por ser esta hipótesis básica en la presente memoria.

2.8 FACTOR DE MÉRITO INTRÍNSECO

El término "factor de mérito" se ha empleado en dos sentidos bien distintos; uno, ligado al mejor compromiso entre la eficiencia y el fondo, en el caso de medidas de baja actividad; y el otro, en relación con la eficiencia de centelleo y el rendimiento cuántico de los fotomultiplicadores. Al primero lo designaremos como "factor de mérito estadístico" y al segundo - "factor de mérito intrínseco" o, más brevemente, "factor de mérito".

Para comprender el papel que juega en el presente trabajo el factor de

mérito, se considerará brevemente y desde un punto de vista cuantitativo el proceso de detección.

Supóngase una solución centelleadora de tres componentes: disolvente, X; centelleador primario, Y; centelleador secundario, Z; y, además, una sustancia extintora, W.

La energía cinética, E, de una partícula beta, después de su interacción produce un número, A, de moléculas excitadas en el primer estado singlete. La relación entre E y A es:

$$A = S_0 s E \quad (2.8.1)$$

en la que s_0 es un factor que depende de la energía y está afectado por el valor de la autoionización, mientras que s depende solamente del disolvente y de la sustancia extintora.

Las moléculas excitadas del disolvente difunden a través de la solución. Una fracción f de las A moléculas excitadas encontrará durante su vida media, τ_x , una molécula del soluto Y y le transferirá su energía. El número B de moléculas del soluto excitadas en el primer estado singlete, S_1 , será:

$$B = fA = S_0 s f E \quad (2.8.2)$$

La eficiencia cuántica, f, de transferencia entre el disolvente y el soluto depende de la naturaleza del disolvente y de la concentración molar del soluto, pero es prácticamente independiente del soluto primario.

Una fracción q de las B moléculas excitadas, del soluto primario, emitirá fotones de fluorescencia. El número P de fotones emitidos será:

$$P = qB = S_0 s f q E \quad (2.8.3)$$

La eficiencia cuántica, q , del soluto primario depende de la naturaleza del soluto; pero es prácticamente independiente de la naturaleza y concentración del disolvente.

Una fracción G de los P fotones resulta absorbida por el centelleador secundario, Z , de modo que:

$$G = rP = S_0 s f q r E \quad (2.8.4)$$

La eficiencia cuántica, r , de transferencia del soluto primario al soluto secundario depende del grado de solapamiento entre el espectro de emisión del soluto primario y el de absorción del soluto secundario.

Sólo una fracción b de las G moléculas excitadas emite fotones de fluorescencia. El número L de fotones de fluorescencia producidos será:

$$L = bG = S_0 s f q r b E \quad (2.8.5)$$

Una fracción c de estos fotones L llegará al fotocátodo del fotomultiplicador. Por lo tanto, el número D de fotones que alcanza el fotomultiplicador será:

$$D = cL = S_0 s f q r b c E \quad (2.8.6)$$

El factor de captación luminosa, c , depende de la geometría óptica del conjunto centelleador-celda óptica-fotomultiplicador.

Sólo una fracción mk de los D fotones que inciden en el fotocátodo causará la emisión de fotoelectrones. El número N de los fotoelectrones generados en cada centelleo será:

$$N = mkD = S_0 s f q r b c m k E \quad (2.8.7)$$

en la que el producto mk es el valor medio de la eficiencia cuántica del fo

tocátodo promediada sobre el espectro de fluorescencia del soluto secundario. El factor k es el valor de la eficiencia cuántica en el máximo de la respuesta espectral del fotocátodo, y m corresponde al factor de adaptación espectral entre el espectro de fluorescencia del soluto secundario y la respuesta espectral del fotocátodo.

Los N electrones producidos son acelerados y multiplicados en los dinodos, de manera que el número T de electrones que llegan al ánodo del fotomultiplicador es:

$$T = M.N \quad (2.8.8)$$

en la que M es la ganancia del fotomultiplicador, que depende del número de etapas dinódicas y del potencial aplicado.

Por consiguiente, la relación entre la amplitud del impulso y la energía E de la partícula incidente es:

$$T = S_0 s f q r b c m k M E \quad (2.8.9)$$

De los distintos factores de la anterior expresión, s_0 está ligado a la - autoionización; s, f, q, r y b dependen del centelleador y de la sustancia incorporada al mismo; c está relacionada con el sistema óptico; m es una propiedad de la combinación centelleador-fotomultiplicador; y , finalmente, k y M son parámetros característicos del fotomultiplicador.

Si se intenta obtener un método de calibración general, tan general - que sea aplicable a cualquier nucleido y a cualquier equipo de centelleo, - habrá que separar las magnitudes que dependen de la energía de la partícula de aquellas que están relacionadas con el sistema espectrométrico.

La expresión (2.6.5) en la que se difiere el factor de mérito de centelleo permite escribir:

$$\eta(E) = \frac{L}{E} = \eta_0 I(E) \quad (2.8.10)$$

y con la ayuda de (2.8.5)

$$\eta(E) = \frac{L}{E} = S_0 s f q r b \quad (2.8.11)$$

Comparando (2.8.11) y (2.8.10) se obtiene que:

$$\eta_0 = s f q r b \quad (2.8.12)$$

$$I(E) = S_0 \quad (2.8.13)$$

Como c , m y k son independientes de la energía, es posible definir un parámetro μ , al que se denominará "factor de mérito intrínseco" y que vendrá expresado por:

$$\mu = \frac{1}{s f q r b c m k} \quad (2.8.14)$$

Nótese que el número de electrones, producidos por una partícula de energía E , al nivel del fotocátodo es:

$$N = \frac{I(E) \cdot E}{\mu} \quad (2.8.15)$$

puesto que $I(E)$ es una magnitud adimensional resulta que μ es la energía - necesaria para producir un fotoelectrón en el fotocátodo.

Conviene antes de finalizar este capítulo aclarar algunos puntos en relación con los últimos términos introducidos. Lo que aquí se ha llamado "factor de mérito del centelleador", $\eta(E)$, coincide con la expresión idéntica - dada por Gibson 1979. Otros autores (Birks 1964 y Horrocks 1974), especialmente los interesados en el proceso de centelleo, emplean siempre la "eficiencia de centelleo": número de fotones emitidos por unidad de energía depositada. En realidad, ambas magnitudes son inversas entre sí, y la utiliza-

ción de uno u otro término no induce a confusión.

Una situación distinta se plantea con lo que aquí se denomina "factor de mérito intrínseco". Ciertos autores (Swank 1958, Horrocks y Studier 1961) llaman simplemente "factor de mérito" a lo que en esta memoria se denomina "factor de mérito intrínseco". En cambio Gibson 1979 define un "factor de mérito para el sistema completo", como el número de fotoelectrones producidos en el fotocátodo por unidad de energía (keV) depositada por la partícula en el centelleador. Por lo tanto, el factor de mérito para Gibson es la inversa del factor de mérito definido aquí.

Aunque la definición de Gibson es más coherente, en relación con el proceso de deducción, sin embargo, resulta menos cómoda en la práctica.

III. METODOS DE CALCULO

3.1 INTRODUCCION

En este capítulo se exponen las fórmulas y las hipótesis admitidas en los distintos procesos de cálculo, encaminados a obtener las curvas de calibración de un espectrómetro de centelleo líquido para los distintos radionucleidos utilizados en la práctica.

Mientras que el factor de mérito es una magnitud imprescindible en el cálculo teórico de la eficiencia de detección, el parámetro de extinción, Q , lo es en su obtención experimental. Sin embargo, ni el factor de mérito se puede sacar experimentalmente -al menos de una forma directa- ni el parámetro de extinción se sabe calcular teóricamente. Por lo tanto, es necesario recurrir a la curva experimental de un nucleido de referencia -en nuestro caso se ha elegido el ^3H - y deducir, junto con los valores teóricos, la relación entre el factor de mérito y la extinción.

3.2 EFICIENCIA DE DETECCION DE EMISORES BETA PUROS

El cálculo de la eficiencia de detección, en el caso de emisores beta, requiere conocer la distribución de la energía depositada en el líquido centelleador. Esta distribución coincidirá con el espectro beta del nucleido - si la energía es baja o media ($E_{\text{max}} < 500 \text{ keV}$); sin embargo, para energías elevadas el efecto de pared puede ser importante y se requerirá determinar las pérdidas en los límites del líquido centelleador (ver fig. 1).

Puesto que la extinción por autoionización reduce apreciablemente la intensidad del destello luminoso, la cuantificación de este proceso es importante en el cálculo de la eficiencia de detección de los emisores beta - "débiles" ($E_{\text{max}} \leq 150 \text{ keV}$).

Finalmente, como la distribución de los electrones que llegan al primer dinodo del tubo fotomultiplicador sigue la ley de Poisson (Wright 1954) el valor de la probabilidad cero de detección afectará a la eficiencia.

3.2.1 Cálculo del espectro beta

De acuerdo con la teoría de Fermi 1934 de la desintegración beta, la función densidad de probabilidad, $P(W)$, de que una partícula posea una energía comprendida entre W y $W+dW$, cuando la energía de la transición es W_m , se expresa mediante la relación:

$$P(W) = \frac{F(Z,W)(W^2-1)^{1/2} W (W_m-W)^2 C}{\int_0^{W_m} F(Z,W)(W^2-1)^{1/2} W (W_m-W)^2 C dW} \quad (3.2.1)$$

en la cual:

Z = número atómico del núcleo residual

W_m = energía total del electrón en unidades mc^2

C = factor de forma que depende de la prohibición de la transición beta

$F(Z,W)$ = factor de Fermi debido al potencial de Coulomb

El factor de forma vale uno, ($C=1$), para las transiciones permitidas. En el caso de transiciones prohibidas con factor de forma único ($\Delta I = 2^-, 3^-, 4^-, \dots$), el valor de C se obtiene mediante las siguientes expresiones (Konopinski 1966):

Si $\Delta I = 2^-$

$$C = (W^2 - 1) + (W_m - W)^2 \quad (3.2.2)$$

Si $\Delta I = 3^+$

$$C = (W^2 - 1)^2 + (W_m - W)^4 + \frac{10}{3} (W^2 - 1)(W_m - W)^2 \quad (3.2.3)$$

Si $\Delta I = 4^-$

$$C = (w^2 - 1)^2 + (w_m - w)^6 + 7(w^2 - 1)(w_m - w)^2 [(w^2 - 1)^2 + (w_m - w)]^2$$

(3.2.4)

Para el cálculo de C, en el caso de funciones prohibidas con factor de forma no único, se han utilizado las expresiones obtenidas a partir de datos experimentales (Daniel 1968).

Para calcular la función de Fermi se ha partido de la expresión relativista de F (Konopinski y Rose 1965):

$$F(Z, w) = 2(1 - \gamma_0) \left(\frac{2pR}{\hbar} \right)^{-2(1 - \gamma_0)} e^{\pi y} \frac{|\Gamma(\gamma_0 + iy)|^2}{|\Gamma(2\gamma_0 + 1)|^2} \quad (3.2.5)$$

en la que

$$\gamma_0 = \left\{ 1 - [\alpha(Z+1)]^2 \right\}^{1/2} \quad (3.2.6)$$

$$y = Z e^2 / \hbar v \quad (3.2.7)$$

El significado de los distintos símbolos empleados en las relaciones - (3.2.5), (3.2.6) y (3.2.7) es el siguiente:

p = momento lineal de la partícula beta

v = velocidad de la partícula

α = constante de estructura fina

$\hbar = h/2\pi$ = constante de Plank racionalizada

R = radio nuclear

Z = número atómico del átomo residual (se tomará con el signo + en el caso de emisión β^- y - en la emisión β^+).

Para calcular la función gamma compleja, $\Gamma(\gamma_0 + iy)$, se ha recurrido a la fórmula asintótica (Whittaker y Watson 1958):

$$\ln \Gamma(z) = (z - \frac{1}{2}) \ln z - z + \frac{1}{2} \ln 2\pi + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{B_{2n}}{2n(2n-1) z^{2n-1}} \quad (3.2.8)$$

donde B_{2n} son los números de Bernoulli. Los primeros términos de la sumatoria son:

$$\frac{1}{12z} - \frac{1}{360z^3} + \frac{1}{1260z^5} - \frac{1}{1680z^7} + \frac{1}{1188z^9} - \frac{691}{360360z^{11}} + \dots \quad (3.2.9)$$

Si la sumatoria se limita a los dos primeros términos, el desarrollo asintótico de $\ln \Gamma(z)$ será:

$$\ln \Gamma(z) \approx (z - \frac{1}{2}) \ln z - z + \frac{1}{2} \ln 2\pi + \frac{1}{12z} - \frac{1}{360z^3} \quad (3.2.10)$$

Mediante la fórmula de recurrencia:

$$\Gamma'(N+z) = (N-1+z)(N-2+z) \dots z \Gamma'(z) \quad (3.2.11)$$

donde N es un entero positivo, se puede obtener el desarrollo de $\ln |\Gamma(z)|^2$, que será tanto más convergente cuanto mayor sea N , por lo tanto:

$$\begin{aligned} \ln |\Gamma(x+iy)|^2 &= (N - \frac{1}{2} + x) \ln [(N+x)^2 + y^2] - 2y \operatorname{arctg} \frac{y}{N+x} - 2(N+x) + \ln 2\pi + \\ &+ \frac{N+x}{(N+x)^2 + y^2} - \frac{(x+N)^3 - 3(x+N)y^2}{180[(x+N)^2 + y^2]^3} - \sum_{k=0}^{N-1} \ln [(k+x)^2 + y^2] \quad \text{con } N \geq 1 \end{aligned} \quad (3.2.12)$$

A fin de controlar los resultados de los cálculos, se computan también el valor medio de la energía cinética:

$$\langle E \rangle = \frac{\int_0^{E_m} E \cdot P(E) dE}{\int_0^{E_m} P(E) dE} \quad (3.2.13)$$

y la energía media, $E_{1/2}$ -valor de la energía que divide el espectro beta - en dos partes de igual área-, o sea:

$$\int_0^{E_{1/2}} P(E) dE = \frac{1}{2} \int_0^{E_{\max}} P(E) dE \quad (3.2.14)$$

En el apéndice C se reproduce el programa MRBETA con el que se han efectuado los cálculos (Grau y García-Toraño 1978).

3.2.2 Aplicación del método de Monte Carlo al estudio del efecto de la pared

El efecto de la pared influye en el cálculo de la eficiencia de detección sólo en un 3 ó 4 por ciento; por lo tanto, el modelo de cálculo utilizado será muy simple.

Se supone que el líquido de centelleo toma una forma cilíndrica de radio r y altura h ; que el medio es homogéneo; que la trayectoria de la partícula es rectilínea; y, finalmente, que la energía disipada, por unidad de longitud, es constante. Se despreciará el efecto de Cherenkov en el vidrio y en las paredes de la celda.

El programa de cálculo genera tres números aleatorios que definen la posición del núcleo que emite una partícula beta. Las coordenadas cartesianas (x, y, z) de la posición se pueden expresar en función de los números aleatorios (w_1, w_2, w_3) mediante las relaciones siguientes:

$$\begin{aligned} x &= r\sqrt{w_1} \cos [\pi(2w_2-1)] \\ y &= r\sqrt{w_1} \sin [\pi(2w_2-1)] \\ z &= \frac{h}{2} (2w_3-1) \end{aligned} \quad (3.2.15)$$

Los cosenos directores (α, β, γ) que definen la dirección de la partícula, se calculan a partir de los números aleatorios (w_4, w_5) con la ayuda de las ecuaciones:

$$\alpha = \sqrt{1-(2w_4-1)^2} \cos \pi(2w_5-1) \quad (3.2.16)$$

$$\beta = \sqrt{1-(2w_4-1)^2} \sin \pi(2w_5-1)$$

$$\gamma = 2w_4-1$$

Si E designa la energía cinética de la partícula, su alcance R se obtiene mediante la expresión:

$$R = 0,11(\sqrt{1+22,4 E_0^2}-1) \quad (3.2.17)$$

El conocimiento de los cosenos directores, la posición inicial de la partícula y el alcance permiten conocer si la partícula deposita toda su energía dentro del centelleador o sólo una parte. En cualquiera de los casos se asocia a la partícula, en lugar de su energía E , la energía cedida al centelleador.

Si se divide el espectro beta, calculado según la fórmula (3.2.1), en franjas iguales y suficientemente estrechas, es fácil calcular, mediante el método antes descrito, el espectro de energía transferida al centelleador. En la fig. 1 se muestra el espectro beta del ^{32}P y el espectro de energía depositada cuando $r=0,55$ cm y $h=3,15$ cm.

3.2.3 Cálculo de la extinción por autoionización

Mediante (2.6.6) y (2.8.13) es inmediato escribir:

$$S_0(E) = I(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \frac{dE}{1+kB \frac{dE}{dx}} \quad (3.2.18)$$

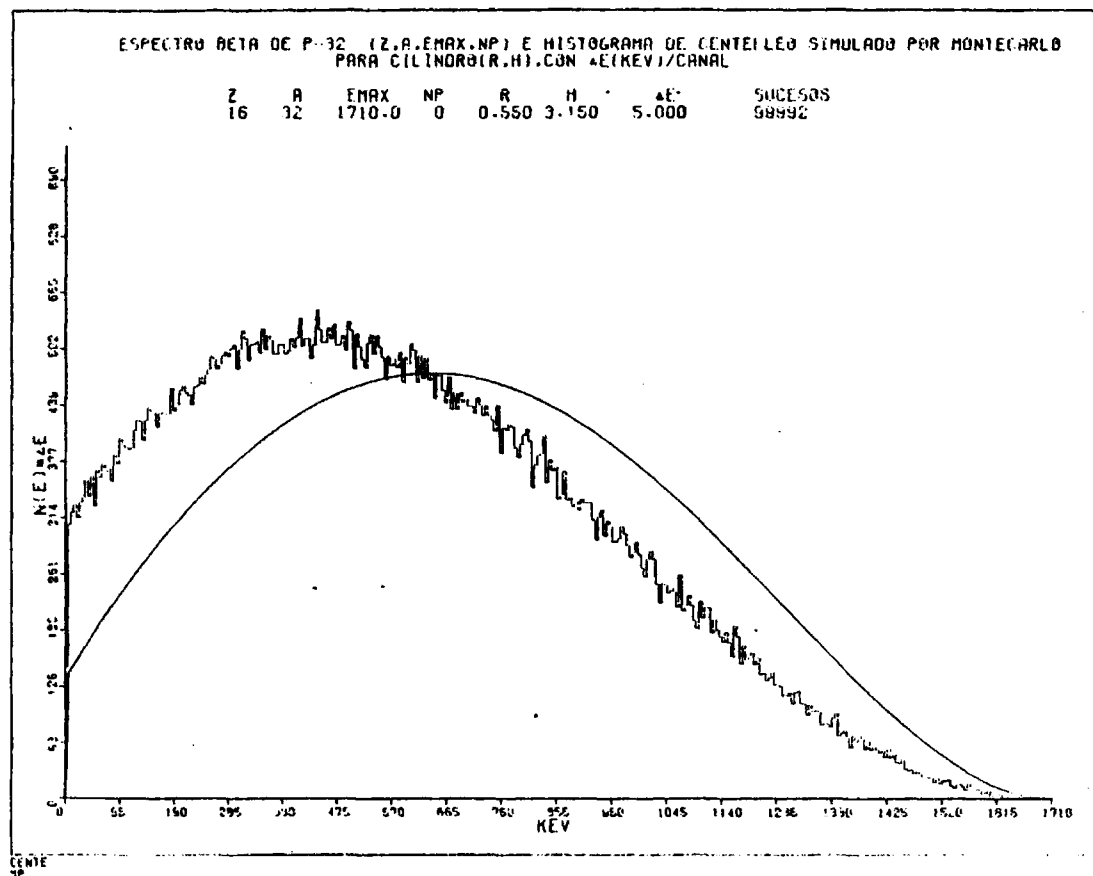


Fig. 1 - Espectro beta de ^{32}P y de energía depositada en el centelleador.

Para efectuar la integración se han de tomar los valores numéricos de dE/dx , que son función de la energía, para una determinada sustancia; por ejemplo, de las tablas de Berger y col. 1964, Nelms 1956. En ambos trabajos se recurre a la fórmula de Bethe-Bloch y se calcula el poder de frenado hasta el valor inferior de 10 keV.

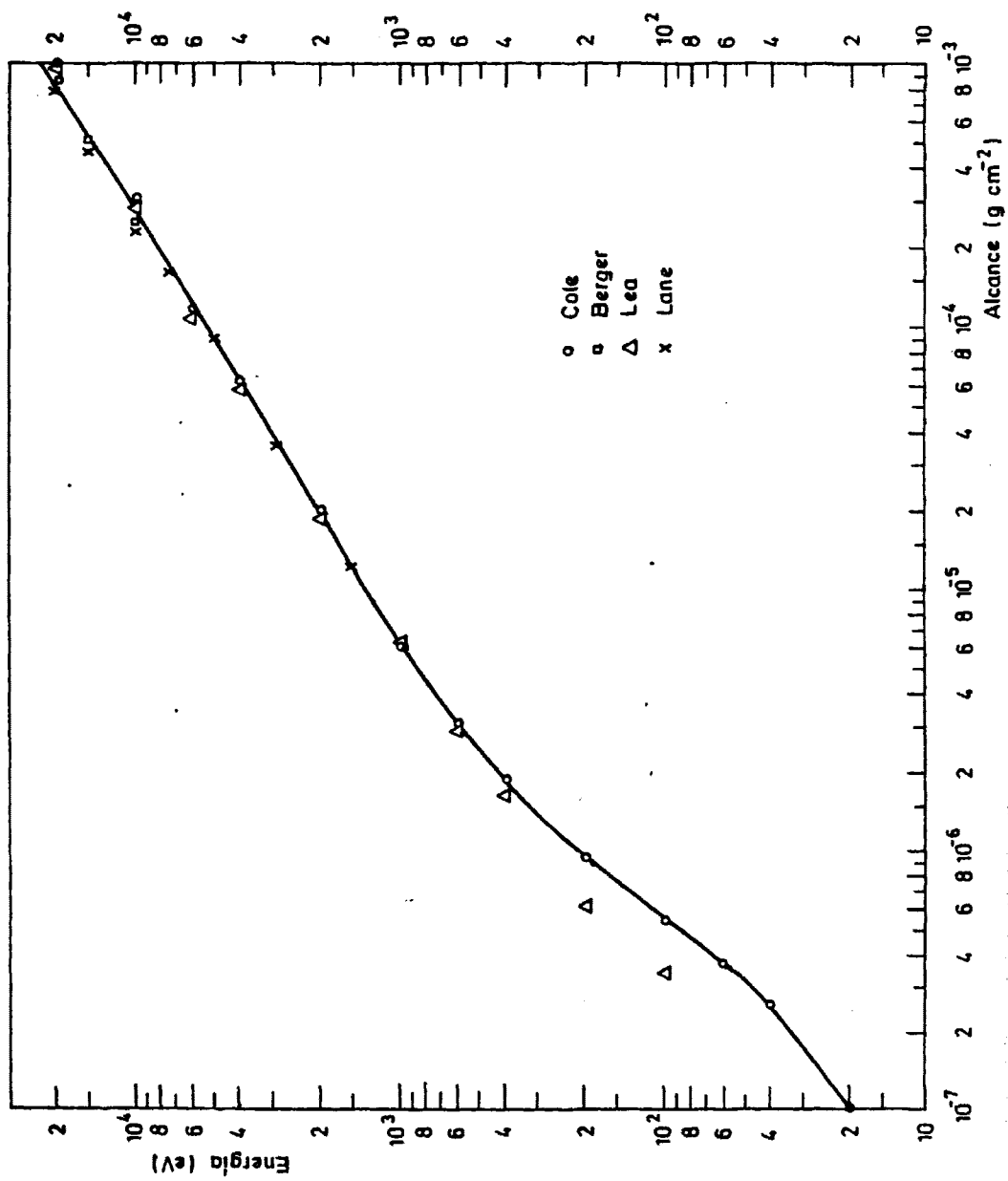
Las fórmulas teóricas para calcular el poder de frenado de electrones no son aplicables a energías inferiores a 10 keV. Por lo tanto, se ha recurrido a los alcances experimentales, en aire y en películas de colodión, de electrones con energías comprendidas entre 20 eV y 10 keV. En la fig. 2 se representan los valores debidos a Cole 1969 (mediante cámara de ionización), a Lane y col. 1954 y Cole 1969 (absorción en colodión), así como los valores calculados por Lea 1946 y Berger y col. 1964.

Según la fórmula de Bethe el poder de frenado másico del colodión es un 5% mayor que el del aire, pero no se ha procedido a corregirlo por ser las incertidumbres en los datos del orden de $\pm 10\%$.

Los valores teóricos de Lea son sorprendentemente buenos, en relación con los experimentales, ya que los resultados numéricos de la fórmula de Bethe, en este intervalo de energías, dependen de manera muy crítica del valor de I ; cabe pensar que Lea ha seleccionado el valor de I de forma casualmente correcta.

Derivando la energía en función del alcance, dE/dR , se obtiene con razonable aproximación dE/dx . Debido a las imprecisiones en los datos y en los cálculos, la exactitud es del orden de $\pm 10\%$ para energías comprendidas entre 10 keV y 1 keV, y del orden de $\pm 20\%$ para energías entre 1 keV y 100 eV. Las fórmulas semiempíricas de Mozumder y col. 1966 y Green y col. 1968 proporcionan: el primero, valores mayores y el segundo, valores inferiores a los calculados en esta memoria.

Las tablas de Nelms y de Berger, antes mencionadas, presentan también valores del poder de frenado para positrones -es decir, entre 10 keV y 8



MeV- pero la ausencia de datos experimentales impiden conocer el poder de frenado para energías inferiores a 10 keV. En este caso se ha calculado la relación $\frac{dE^-/dx}{dE^+/dx}$ a partir de las tablas de Nelms para el tolueno. En la fig. 3 se representa la anterior relación en función de la energía y se observa que con una aceptable precisión se puede extrapolar hasta $E=1$ keV y así obtener los valores de dE^+/dx hasta 1000 eV.

El límite inferior de la integral, en la fórmula (3.2.18) se tomará - igual 100 eV en lugar de cero, con lo cual el error será despreciable.

3.2.4 Cálculo de la eficiencia de detección

Para poder calcular la eficiencia de detección de un emisor beta, se - estudiará primero el caso de un haz de partículas monoenergéticas y después se pasará a la situación más compleja de una distribución beta.

Un electrón de energía cinética E producirá, en media, N fotoelectrones al nivel del primer dinodo. Si el factor de mérito es μ , y el factor - de autoionización $S_0(E)$, la relación que liga estos parámetros es, según - (2.8.15), la siguiente:

$$N = \frac{E S_0(E)}{\mu} \quad (3.2.19)$$

donde N es el valor esperado en el sentido estadístico. El hecho básico de que tanto la emisión secundaria como el proceso de multiplicación, en un fotomultiplicador, sigan la ley estadística de Poisson, constituye uno de los principales puntos de apoyo de esta memoria; es por consiguiente obligado - el dedicar algunas líneas a justificar la validez de esta afirmación:

Fue Wright 1954b el primero en comprobar experimentalmente la hipótesis "poissoniana" y establecer que el efecto debido a la no uniformidad en las superficies catódica y dinódica era despreciable frente a la fluctua-

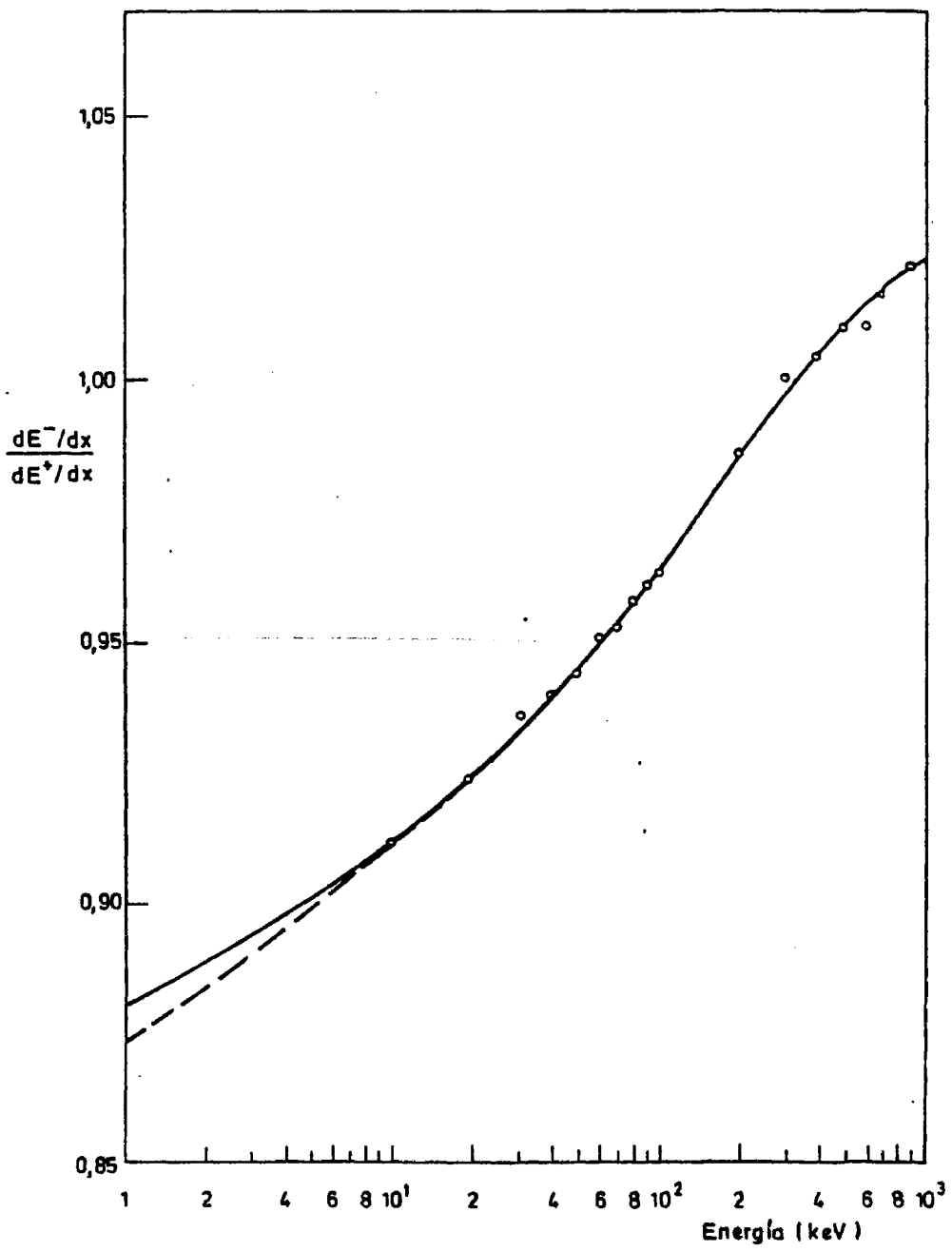


Fig. 3 - Curva experimental y extrapolada de la relación $\frac{dE^-/dx}{dE^+/dx}$

ción estadística. Breitenberger 1955 planteó, sin embargo, el hecho experimental de que la varianza por etapa era, según sus resultados, mayor que la prevista según la estadística de Poisson. Lombard y Martin 1961 calcularon la forma esperada del espectro según la estadística de Poisson, pero fueron incapaces de establecer una correspondencia entre las curvas teóricas y las experimentales; y, por consiguiente, rechazaron la hipótesis de que el proceso seguía la ley de Poisson. Sin embargo, tanto Iinuma y col. 1962 como Tusting y col. 1962 y, posteriormente, Delaney y col. 1964 consiguieron demostrar el acuerdo entre sus resultados experimentales y los teóricos de Lombard y Martin.

La explicación de los resultados negativos de Lombard y Martin se consiguió estudiando los dinodos del tipo de fotomultiplicador utilizado por estos investigadores. Según Badwin y col. 1965 las distintas partes de los dinodos de Ag-MgO -usados por Lombard y Martin- tienen distinto factor de multiplicación, mientras que para los dinodos de Sb-CsO -manejados por los demás investigadores- la multiplicación es uniforme en todo el dinodo.

Los experimentos más recientes avalan la hipótesis de que la distribución de electrones, a la salida de cada etapa fotomultiplicadora, está regida por la estadística de Poisson, al menos para los valores del factor de multiplicación encontrados en la práctica.

Admitido, pues, que la emisión secundaria sigue la ley de Poisson, la probabilidad $P(N, \bar{N})$ de obtener N fotoelectrones cuando el valor esperado es \bar{N} se calcula recurriendo a la expresión:

$$P(N, \bar{N}) = \frac{(\bar{N})^N e^{-\bar{N}}}{N!} \quad (3.2.20)$$

La probabilidad de que el fotomultiplicador no proporcione ningún fotoelectrón, como respuesta a la llegada de los fotones cuando la media esperada es \bar{N} , viene dada por la expresión:

$$P(0, \bar{N}) = e^{-\bar{N}} \quad (3.2.21)$$

A $P(0, N)$ se le denomina probabilidad de detección nula; y al hecho de que esta probabilidad sea distinta de cero, se debe el que no se pueda obtener la eficiencia de detección extrapolando hasta discriminación cero, cuando se calibran emisores beta débiles.

Si se admite que al producirse un fotoelectrón en el fotocátodo se genera un impulso registrable, el número de impulsos, N_d , producidos al interaccionar con el centelleador N_0 partículas de energía E , será:

$$N_d = N_0 (1 - P(0, N)) \quad (3.2.22)$$

Así pues, la eficiencia de detección ξ vendrá dada por la siguiente expresión:

$$\xi = \frac{N_d}{N_0} = 1 - P(0, N) = 1 - e^{-N} \quad (3.2.23)$$

Cuando el sistema detector esté formado por dos fotomultiplicadores conectados en coincidencia y situados uno frente al otro -como ocurre en los modernos equipos de centelleo líquido-, las eficiencias de cada uno de los tubos se obtendrá a partir de las relaciones:

$$\begin{aligned} \xi_1 &= 1 - e^{-N_1} \\ \xi_2 &= 1 - e^{-N_2} \end{aligned} \quad (3.2.24)$$

Mediante la hipótesis simplificadora de que las eficiencias de ambos tubos son iguales -hipótesis aceptable en la práctica- y que el reflector de la celda de medida no introduce una anisotropía apreciable, se tiene:

$$N_1 = N_2 = \frac{N}{2} \quad (3.2.25)$$

O sea, que la eficiencia de detección del sistema, cuando los tubos son iguales y están en coincidencia, es simplemente:

$$\xi_c = \xi_1 \xi_2 = (1 - e^{-\bar{N}/2})^2 \quad (3.2.26)$$

e introduciendo el factor de mérito -expresión (3.2.19)- la ecuación (3.2.26) se convierte en:

$$\xi_c = (1 - e^{-E S_0/2\mu})^2 \quad (3.2.27)$$

En el caso de una distribución, $N(E)$, de partícula beta, la eficiencia de detección de un sistema formado por dos tubos fotomultiplicadores en coincidencia se expresa mediante la ecuación:

$$\xi_c = \int_0^{E_{\max}} N(E) (1 - e^{-E S_0/2\mu})^2 dE \quad (3.2.28)$$

Otro método para calcular la eficiencia de detección consiste en sumar los productos de las probabilidades $P(N, \bar{N})$, de obtener 2, 3, ..., fotoelectrones, por el factor $1-2^{1-\bar{N}}$; este término multiplicador permite considerar solamente aquellas interacciones que han originado, por lo menos, un fotoelectrón en cada fotomultiplicador. Por lo tanto:

$$\xi_c = \sum_{n=2}^{\infty} P(N, \bar{N}) (1-2^{1-\bar{N}}) \quad (3.2.29)$$

Esta expresión es válida cuando las partículas que interaccionan con el centelleador son monoenergéticas. En el caso de un nucleido beta, será necesario calcular primero la distribución de los fotoelectrones emitidos, para una energía E ; después, la distribución de los fotoelectrones debida al espectro beta; y, finalmente, la eficiencia de detección.

La distribución $f(n)$ de los fotoelectrones a la salida del fotocátodo vendrá dada por la expresión:

$$f(N) = P(N, \bar{N}) (1-2^{1-\bar{N}}) \quad (3.2.30)$$

donde n es el número de partículas de energía E .

En el caso de un espectro beta, en el que n_1 es el número de partículas con energía comprendida entre E_1 y $E_1 + \Delta E_1$, la distribución $f(N; E_1)$ de los fotoelectrones toma la forma:

$$f(N; E_1) = P(N, \bar{N}) (1 - 2^{1-N}) n_1 \quad (3.2.31)$$

y la distribución $F(N)$, cuando se considera el espectro beta completo, será:

$$F(N) = \sum_{i=1}^M f(N; E_i) = \sum_{i=1}^M P(N, \bar{N}_i) (1 - 2^{1-N}) n_i \quad (3.2.32)$$

o, más explícitamente,

$$F(N) = \sum_{i=1}^M \frac{(\bar{N}_i)^N e^{-\bar{N}_i}}{N!} (1 - 2^{1-N}) n_i \quad (3.2.33)$$

en la cual $N = 2, 3, 4, \dots, \infty$, mientras que \bar{N}_i puede tomar cualquier valor positivo, entero o fraccionario. El índice superior del sumatorio, M , corresponde al número de intervalos ΔE_i con que se ha dividido el espectro beta.

Es importante hacer notar que, en este caso, \bar{N}_i es el valor medio del número total de fotoelectrones producidos por ambos fotocátodos; o sea, que

$$\bar{N}_i = \frac{E_i \cdot S_0(E_i)}{\mu} \quad (3.2.34)$$

Cuando el espectro beta está normalizado, por ejemplo a uno, se verifica la condición siguiente:

$$\sum_{i=1}^M n_i = 1 \quad (3.2.35)$$

y el cálculo de la eficiencia de detección es inmediato:

$$\xi = \sum_{N=2}^{\infty} F(N) = \sum_{N=2}^{\infty} \sum_{i=1}^M \frac{(N_i)^N e^{-N_i}}{N!} (1-2^{1-N}) n_i \quad (3.2.36)$$

La expresión (3.2.29) merece un comentario especial; comentario extensible a las siguientes fórmulas obtenidas hasta aquí. En la mayoría de los trabajos consultados (Swank 1958; Guinn 1958; Birks 1964; Smith y col. 1956; Watt y col. 1964 y Horrocks 1961, 1974) se emplea incorrectamente, en lugar del factor $1-2^N$, el factor $1-2^{\bar{N}}$. Sólo Tissen 1958 y Jordan 1971 son una excepción. Este último autor comprueba numéricamente que la fórmula (3.2.26) y la (3.2.29) dan los mismos resultados; en el Apéndice B se demuestra que partiendo de una de las dos expresiones se llega a la otra, sin más que recurrir a aplicaciones sencillas de la ley de Poisson.

3.2.5 Descripción del programa de cálculo

Para el cálculo de la eficiencia de los emisores beta monoenergéticos se ha desarrollado un programa de cálculo para el ordenador UNIVAC 1110 del Centro de Cálculo de la JEN. El programa consta de un programa principal y tres subprogramas. El programa principal efectúa la entrada de los datos y la impresión o dibujo de los resultados. Los cálculos más importantes son: evaluación de la expresión (3.2.1) y normalización del espectro, obtención de la energía media y del valor medio de la energía, correcciones por autoionización y efecto de pared y cálculo de la eficiencia de detección.

Dado el elevado valor alcanzado por algunas variables y el grado de precisión deseado, se han empleado variables con doble precisión.

En el cálculo del espectro beta y de la eficiencia se ha tomado el número de intervalos de acuerdo con el siguiente criterio:

E_{max} (keV)	Nº intervalos
$E \leq 300$	300
$300 < E \leq 900$	450
$900 < E \leq 1500$	600
$E > 1500$	750

3.3 EFICIENCIA DE DETECCION EN LA CAPTURA ELECTRONICA PURA

Cuando se consulta la bibliografía relacionada con la calibración de nucleidos que se desintegran por captura electrónica (C.E.) se observan sorprendentes confusiones.

Si se considera, por ejemplo, el radionucleido ^{55}Fe , que por C.E. se transforma en el nucleido estable ^{55}Mn , los trabajos de Dern y col. 1961, Perry y col. 1963, Bakins y co. 1966, Cosolito y col. 1968 y Miller y col. 1969 llegan a conclusiones tan sorprendentes como que la eficiencia máxima de detección de este nucleido, en centelleo líquido, es del 26%. Suponen estos autores que sólo los rayos K γ contribuyen a la detección, olvidando que existen electrones Auger con energías comprendidas entre 5 y 6.5 keV con una intensidad absoluta del 60,4%. El razonamiento de estos autores es bien simple: puesto que el rendimiento de fluorescencia, k , es 0.26 (inferior en un 20% al admitido actualmente) la eficiencia de detección será del 26%. Con lo que admiten implícitamente que la eficiencia de detección de los rayos K γ es del 100%.

En un trabajo posterior Horrocks 1971 fija la eficiencia máxima de detección en el 90% y afirma: "la eficiencia para el ^{55}Fe será mayor que la del ^3H en soluciones con idéntica extinción"; y añade: "la extinción reducirá la eficiencia para el ^3H en mayor grado que la eficiencia del ^{55}Fe ". Es-

tas afirmaciones son válidas en casos excepcionales -valores del factor de mérito inferiores a 1.75- y erróneas en la mayoría de los casos prácticos, como comprobó experimentalmente Gibson y col. 1972 y Gibson 1978.

En lo que sigue se estudiarán los distintos factores que intervienen - en el cálculo de la eficiencia de detección.

3.3.1 Probabilidad de interacción de los rayos X

Los rayos X, generados en el seno del líquido de centelleo, interaccionan o escapan del recipiente que actúa como detector, dependiendo de la - energía del fotón, del punto en que éste ha sido generado y de su dirección de emergencia.

La probabilidad de escape de un fotón que recorre una distancia x , en un medio de coeficiente de atenuación, μ , se calcula mediante la expresión: $e^{-\mu x}$.

Cuando se supone que los fotones interaccionan exclusivamente con el - líquido centelleador, el cálculo de la probabilidad de escape se reduce a - un problema geométrico. Gibson y col. 1972 han realizado cálculos de este - tipo para energías comprendidas entre cero y cien keV.

En la presente memoria se ha tenido en cuenta tanto la interacción con el centelleador como con el vidrio y se ha extendido el rango de energías - hasta los 1000 keV. Se ha empleado, para ello, el método estadístico de Monte Carlo. Los coeficientes de atenuación se han tomado de las tablas de Mc Master y col. 1967. En la fig. 4 se representan las probabilidades de captura en función de la energía:

$$P_c = 1 - I(E) \quad (3.3.1)$$

donde $I(E)$ es la probabilidad de que un fotón de energía E escape sin inter

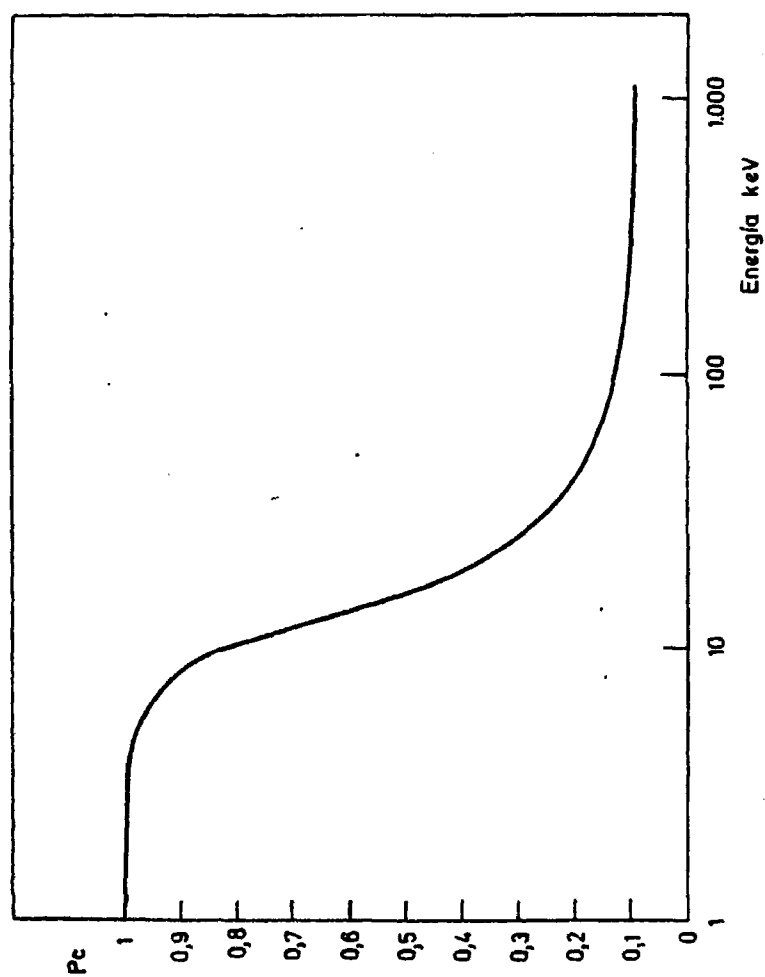


Fig. 4 -- Probabilidad de interacción con el centelleador en el caso de radiación X y gamma.

accionar; para 15 cm^3 de volumen de centelleador (diámetro interior = 2.50 cm y altura del líquido $\approx 3.06 \text{ cm}$).

Se ha supuesto que la interacción con el líquido centelleador tiene lugar, exclusivamente, con átomos de carbono, tanto en el caso de un centelleador de tolueno como en uno de dioxano y naftaleno.

3.3.2 Cálculo de la eficiencia de detección

Para simplificar el estudio del proceso de reordenación electrónica, subsiguiente a la C.E., se han admitido las siguientes hipótesis:

- La C.E. se efectuará solamente en las capas K o L; es decir, que en la C.E. pura se verificará siempre que: $P_K + P_L = 1$.
- Se atribuirá a cada capa electrónica la energía media de las subcapas correspondientes: $L = \langle L_{II} + L_{III} \rangle$, $M = \langle M_{IV} + M_V \rangle$.
- A la producción de un rayo KX le seguirá bien uno o varios electrones Auger, bien un rayo LX que puede escapar o interaccionar con el centelleador.

A pesar de estas hipótesis restrictivas, el número de vías distintas de desintegración aún asciende a 21. En la tabla I se han representado 11 esquemas de desintegración por C.E. seguida de distintos procesos atómicos: nueve corresponden a la captura K y dos a la captura L. El número de vías distintas (columna segunda) es de 21 y el tipo de radiación que interviene en cada proceso se ha indicado en la tercera columna; con los símbolos $X_K \rightarrow$ $X_L \rightarrow$ se indica que un rayo X, K o L respectivamente, escapa del volumen centelleador sin interaccionar; y con $X_L \rightarrow C$, $X_K \rightarrow C$, se simboliza la interacción de un rayo X con un átomo de carbono.

No todas las vías son igualmente probables: algunas son improbables pa

ra cualquier nucleido; otras son poco probables para algunos nucleidos; y - otras, finalmente, son altamente probables para todos los nucleidos. En la columna cuarta se han escrito las probabilidades por desintegración para ca da vía. Los símbolos usados tienen el siguiente significado:

P_K = probabilidad de que la C.E. sea K.

P_L = probabilidad de que la C.E. sea L.

ω_K = rendimiento de fluorescencia K.

$\bar{\omega}_L$ = rendimiento medio de fluorescencia L.

P_{KLL} = probabilidad de que el electrón Auger sea KLL.

P_{KLM} = probabilidad de que el electrón Auger sea KLM.

P_{KMM} = probabilidad de que el electrón Auger sea KMM.

I_{KL} = probabilidad de escape de un rayo $K\alpha$.

I_{KM} = probabilidad de escape de un rayo $K\beta_1$.

I_{LM} = probabilidad de escape de un rayo $L\alpha$.

En lo que sigue, E_{ij} designará la energía del proceso i que corresponde a la vía j , y φ_j la probabilidad por desintegración correspondiente a la vía j .

La energía E_j depositada en el líquido de centelleo después de acaecidos los n_j procesos de la vía j es:

$$E_j = \sum_{i=1}^{n_j} E_{ij} \quad (3.3.2)$$

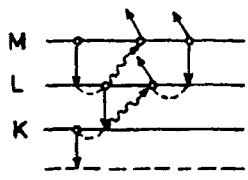
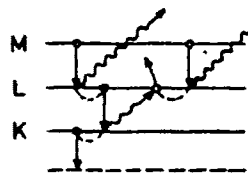
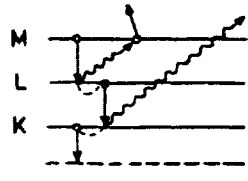
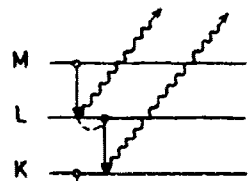
El número medio N_j de electrones esperados en cada uno de los dos fotocatodos, para la vía j , es:

$$N_j = \frac{S_0 E_j}{2 \mu} = \frac{1}{2 \mu} \sum_{i=1}^{n_j} E_{ij} S_0(E_i) \quad (3.3.3)$$

TABLA 1

-51-

Procesos atómicos en la C.E. pura

Esquema	Via	Procesos	Probabilidad / Desintegración
	1	$K \rightarrow L$ $L \rightarrow M$ $L \rightarrow M$	$P_K (1-W_K) (KLL) (1-W_L)^2 (LMM)^2$
	2	$K \rightarrow L$ $L \rightarrow M$ $X_L \rightarrow$	$2P_K (1-W_K) (KLL) (1-W_L) (LMM) W_L (LM)$ I_L
	3	$K \rightarrow L$ $L \rightarrow M$ $X_L \rightarrow C$	$2P_K (1-W_K) (KLL) (1-W_L) (LMM) W_L (LM) (1-I_L)$
	4	$K \rightarrow L$ $2X_L \rightarrow$	$P_K (1-W_K) (KLL) (W_L^2) (LM)^2 I_L^2$
	5	$K \rightarrow L$ $X_L \rightarrow$ $X_L \rightarrow C$	$P_K (1-W_K) (KLL) W_L^2 (LM)^2 (1-I_L) I_L$
	6	$K \rightarrow L$ $2X_L \rightarrow C$	$P_K (1-W_K) (KLL) W_L^2 (LM)^2 (1-I_L)^2$
	7	$L \rightarrow M$ $X_K \rightarrow$	$P_K W_K (KL) (1-W_L) (LMM) I_K$
	8	$L \rightarrow M$ $X_K \rightarrow C$ C	$P_K W_K (KL) (1-W_L) (LMM) (1-I_K)$
	9	$X_L \rightarrow$ $X_K \rightarrow$	$P_K W_K (KL) W_L (LM) I_K I_L$
	10	$X_K \rightarrow C$ $X_L \rightarrow$ C	$P_K W_K (KL) W_L (LM) (1-I_K) I_L$
	11	$X_K \rightarrow C$ $X_L \rightarrow C$ $2C$	$P_K W_K (KL) W_L (LM) (1-I_K) (1-I_L)$
	12	$X_K \rightarrow$ $X_L \rightarrow C$ C	$P_K W_K (KL) W_L (LM) (1-I_K) I_K$

-52-

-52-

Esquema	Via	Procesos	Probabilidad / Desintegración
	13	K M M L M M	$P_K (1-W_K) (KLM) (1-W_L) (LMM)$
	14	K M M $X_L \rightarrow$	$P_K (1-W_K) (KLM) W_L (LM) I_L$
	15	K M M $X_L \rightarrow C$ C	$P_K (1-W_K) (KLM) W_L (LM) (1-I_L)$
	16	K M M	$P_K (1-W_K) (KMM)$
	17	$X_{KN} \rightarrow$	$P_K W_K (KM) I'_K$
	18	$X_{KM} \rightarrow C$ C	$P_K W_K (KM) (1-I'_K)$
	19	$X_L \rightarrow$	$(1-P_K) W_L (LM) I_L$
	20	$X_L \rightarrow C$ C	$(1-P_K) W_L (LM) (1-I_L)$
	21	L M M	$(1-P_K) (1-W_L) (LMM)$

Por lo tanto, la eficiencia parcial ξ_j , debida a la vía j , se obtendrá a partir de la expresión:

$$\xi_j = (1 - e^{-N_j})^2 \quad (3.3.4)$$

Finalmente, la eficiencia total ξ se calcula mediante la ecuación:

$$\xi = \sum_{j=1}^{\alpha} \xi_j \varphi_j = \sum_{j=1}^{\alpha} \varphi_j \left[1 - \exp\left(-\frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{n_j} E_{ij} S_o(E_i)\right) \right]^2 \quad (3.3.5)$$

donde α es el número total de vías; o sea, de 21, según la tabla I.

3.4 EFICIENCIA DE DETECCION EN LAS TRANSICIONES GAMMA

En general, la emisión gamma viene precedida por alguna de las formas más frecuentes de desintegración: beta menos, beta más, captura electrónica o alfa. Sólo en el caso de nucleidos isómeros -y no en todos- se produce la desexcitación nuclear pura; y cuando esto sucede, junto a la emisión de fotones gamma, la muestra emite, generalmente, electrones debidos a la conversión interna de la transición.

La eficiencia de detección de los fotones depende de su energía y del volumen y naturaleza del centelleador. En las aplicaciones, el volumen puede variar entre uno y 22 cm³ (en esta memoria se han empleado 10 ó 15 cm³); y la naturaleza, en lo que a la interacción se refiere, es la misma para todos los líquidos de centelleo ordinarios. En la fig. 4 se ha representado la probabilidad de interacción de los fotones gamma en función de la energía (el método de medida se describirá en el capítulo cuarto). Puede observarse que incluso para energías elevadas los fotones gamma contribuyen apreciablemente a la detección.

Por su parte, los electrones de conversión se detectan con el cien por

ciento de eficiencia cuando su energía es superior a 200 keV.

La forma más simple de abordar el problema consiste en estudiar las - transiciones isoméricas.

3.4.1 Transiciones isoméricas simples

El término "simple" hace referencia a la existencia de un sólo nivel - excitado (el isómero) en el núcleo. Puesto que la emisión gamma y la conver - sión interna son procesos competitivos en la desexcitación del núcleo, se - pueden considerar tres modos distintos de desexcitación; en unos, práctica - mente sólo se emitirán electrones de conversión; en otros, será la emisión gamma la predominante y, finalmente, en muchos casos, coexistirán ambas for - mas de emisión.

En lo que sigue se estudiarán por separado estos tres modos de desexci - tación.

a) Emisión de electrones producidos en la conversión interna

La probabilidad, P_K , de una conversión interna K se obtiene a partir - de la expresión:

$$P_K = \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (3.4.1)$$

en la que α_K y α_t son, respectivamente, los coeficientes de conversión - interna K y total.

Si se supone que la conversión ocurre solamente en las capas K y L, lo cual equivale a admitir que la conversión en las demás capas es desprecia - ble, la probabilidad, P_L , de una conversión del tipo L será:

$$P_L = \frac{\alpha_t - \alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (3.4.2)$$

Las energías, E_{CK} y E_{CL} , de los electrones emitidos por conversión de las capas K y L, respectivamente, se pueden calcular mediante las ecuaciones:

$$E_{CK} = E - E_K \quad (3.4.3)$$

$$E_{CL} = E - E_L \quad (3.4.4)$$

donde E_K y E_L son las energías de ligadura de los electrones en las capas K y L, y E , la energía de la transición isomérica.

El número esperado, N_K , de fotoelectrones en el cátodo del fotomultiplicador, debidos a una conversión K, será:

$$N_K = \frac{E_{CK} S_o(E_{CK})}{2\mu} \quad (3.4.5)$$

y el de fotoelectrones debidos a una conversión L se obtendrá a partir de la expresión:

$$N_L = \frac{E_{CL} S_o(E_{CL})}{2\mu} \quad (3.4.6)$$

En el caso particular —frecuente en la práctica— de que la energía de la transición sea mucho mayor que la de ligadura ($E_{CK} \approx E_{CL} \approx E$) la eficiencia de detección será:

$$\varepsilon = P_K [1 - \exp(-N_K)]^2 + P_L [1 - \exp(-N_L)]^2 \approx \left[1 - \exp\left(-\frac{E S_o(E)}{2\mu}\right) \right]^2 \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t} \quad (3.4.7)$$

En general, cuando se consideran además los efectos debidos a la reestructuración atómica y E_K no es despreciable frente a E , la expresión de la eficiencia es bastante más compleja.

Como la amplitud de cada uno de los impulsos no es proporcional a la energía depositada en el detector, dentro del tiempo de resolución de éste, sino que depende del número de fotoelectrones producidos en cada desintegración, será necesario combinar la producción de los electrones de conversión con las distintas vías de reestructuración atómica. La situación es parecida a la contemplada en la captura electrónica (véase la tabla I).

En la conversión K habrá de combinarse la producción de los N_K fotoelectrones, debidos a la conversión, con los generados en cada una de las veintinueve vías distintas de reestructuración atómica. Por consiguiente, empleando la notación del subapartado (3.3.2) y la fórmula (3.3.3), tenemos que el número total de fotoelectrones esperados, N_{Kj} , en cada uno de los fotocatodos, cuando ocurre una conversión K seguida de una reestructuración electrónica según la vía j, será:

$$N_{Kj} = N_K + N_j = \frac{E_{CK} S_o(E_{CK})}{2\mu} + \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{18} E_{ij} S_o(E_{ij}) \quad (3.4.8)$$

De la misma forma, en el caso de la conversión L, se combinará el número de fotoelectrones N_L con los de las tres vías L. El número N_{Lj} de fotoelectrones esperados en cada tubo, para la vía j, será:

$$N_{Lj} = N_L + N_j = \frac{E_{CL} S_o(E_{CL})}{2\mu} + \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^3 E_{ij} S_o(E_{ij}) \quad (3.4.9)$$

Las eficiencias parciales de detección, ξ_j , que corresponden a una vía genérica j, para cada una de las formas de conversión, vendrán dadas por las expresiones:

$$\varepsilon_{Kj} = \left[1 - \exp(-N_{Kj}) \right]^2 \quad (3.4.10)$$

$$\varepsilon_{Lj} = \left[1 - \exp(-N_{Lj}) \right]^2 \quad (3.4.11)$$

Por consiguiente, la eficiencia de detección se obtendrá a partir de la ecuación:

$$\varepsilon_c = \sum_{j=1}^{18} \varepsilon_{Kj} \varphi_j^1 + \sum_{j=1}^3 \varepsilon_{Lj} \varphi_j^2 \quad (3.4.12)$$

o en forma más desarrollada:

$$\begin{aligned} \varepsilon_c = & \sum_{j=1}^{18} \varphi_j^1 \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{E_{CK} S_o(E_{CK})}{2\mu} - \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{n_{Kj}} E_{ij} S_o(E_{ij}) \right] \right\}^2 + \\ & + \sum_{j=1}^3 \varphi_j^2 \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{E_{CL} S_o(E_{CL})}{2\mu} - \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{n_{Lj}} E_{ij} S_o(E_{ij}) \right] \right\}^2 \end{aligned} \quad (3.4.13)$$

donde φ_j^1 son las dieciocho funciones ligadas a la conversión K, y φ_j^2 las tres funciones que describen la conversión L.

Es importante aclarar que φ_j^1 y φ_j^2 son las mismas funciones φ_j de la fórmula (3.3.5). El desarrollo de estas funciones se encuentra en la columna "número de procesos/desintegración" de la tabla I. Pero, así como allí P_K y P_L eran las probabilidades de C.E. K y L, respectivamente, aquí son las probabilidades de conversión interna K y L.

b) Emisión de fotones gamma

Una notable simplificación se puede introducir en el cálculo cuando la energía es baja: probabilidad de interacción fotoeléctrica elevada frente a las probabilidades de interacción de Compton y de pares.

Si I_Y es la probabilidad de escape, la probabilidad de interacción será $1-I_Y$. Como cada interacción producirá dos electrones, uno fotoeléctrico de energía E_F y otro Auger KLL de energía E_O , la eficiencia de detección se calculará a partir de la expresión:

$$\xi_Y = \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{1}{2\mu} (E_F \cdot S_O(E_F) + E_O \cdot S_O(E_O)) \right] \right\}^2 (1-I_Y) \quad (3.4.14)$$

Cuando se consideran los tres procesos de interacción de la radiación con la materia, el método de cálculo consta de los siguientes pasos: primero, - aplicando el método de Monte Carlo, se obtiene la distribución de los electrones, según los tres procesos de interacción; después se normaliza la función $B(E)$, que define la distribución de electrones, a una desintegración; y, finalmente, se calcula la eficiencia de detección mediante la fórmula siguiente:

$$\xi_Y = \int_0^{E_Y} B(E) \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{1}{2\mu} (E \cdot S_O(E)) \right] \right\}^2 dE \quad (3.4.15)$$

en donde no se ha tenido en cuenta la energía de enlace del electrón en el átomo de carbono. Esta simplificación es admisible, puesto que la energía de enlace es comparable con la energía del fotón gamma sólo cuando el efecto fotoeléctrico es predominante y, tanto el Compton como la producción de pares, despreciables.

c) Emisión de fotones gamma y de electrones de conversión interna

En este caso, además de las fórmulas (3.4.1) y (3.4.2), hay que conocer la probabilidad, P_Y , de emisión de fotones gamma:

$$P_Y = \frac{1}{1 + \alpha_t} \quad (3.4.16)$$

La eficiencia de detección es simplemente:

$$\xi = \xi_c + \xi_Y \quad (3.4.17)$$

en la que:

$$\begin{aligned} \xi_c = & \sum_{j=1}^{18} \varphi_j^1 \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{E_1 S_o(E_1)}{2\mu} - \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{N_j} E_{ij} S_o(E_{ij}) \right] \right\}^2 + \\ & + \sum_{r=1}^3 \varphi_r^2 \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{E_2 S_o(E_2)}{2\mu} - \frac{1}{2\mu} \sum_{s=1}^{N_r} E_{sr} S_o(E_{sr}) \right] \right\}^2 \end{aligned} \quad (3.4.18)$$

$$\xi_Y = P_Y (1 - I_Y) \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{1}{\mu} \left(\frac{E_F S_o(E_F)}{2} + \frac{E_o S_o(E_o)}{2} \right) \right] \right\}^2 \quad (3.4.19)$$

En ambas expresiones se ha sustituido E_{CK} y E_{CL} -definidas en (3.4.3) y - (3.4.4)- por E_1 y E_2 , respectivamente, a fin de simplificar la escritura. - Se ha supuesto, además, que la interacción gamma es puramente fotoeléctrica.

Si se consideran los tres tipos fundamentales de interacción de la radiación gamma -caso estudiado en la parte b) de este apartado- la eficiencia de detección se puede calcular mediante la fórmula:

$$\xi = \xi_c + \int_0^{E_Y} B(E) \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{E S_o(E)}{2\mu} \right] \right\}^2 dE \quad (3.4.20)$$

Dada la complejidad de los cálculos es recomendable introducir hipótesis simplificadoras, siempre que ello sea posible. Por ejemplo, son relativamente frecuentes las transiciones gamma con energías inferiores a los 200 keV; la fórmula adecuada en este caso es la (3.4.17). También lo son las transiciones de más de 400 keV, en cuyo caso la relación (3.4.7) es suficientemente precisa y mucho más sencilla.

3.4.2 Transición isomérica doble

Se considerará solamente el caso de un estado isómero que se desexcita mediante dos transiciones gamma en cascada, convertidas parcialmente. La hipótesis más sencilla consiste en suponer que las energías de los electrones de conversión son mucho mayores que las de ligadura y que la probabilidad de interacción de los fotones gamma es despreciable.

A fin de simplificar la escritura de las fórmulas se introducirá la función $G(E_1, E_2, \dots, E_n, E_{ij})$ cuya definición es:

$$G(E_1, \dots, E_n, E_{ij}) \equiv \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{1}{2\mu} (E_1 S_0(1) + \dots + E_n S_0(E_n) + \sum_{i=1}^n E_{ij} S_0(E_{ij})) \right] \right\}^2 \quad (3.4.21)$$

La eficiencia de detección será, por lo tanto, igual a:

$$\begin{aligned} \xi = & P_{K1} P_{K2} G(E_{K1}, E_{K2}) + P_{K1} P_{L2} G(E_{K1}, E_{L2}) + P_{L1} P_{K2} G(E_{L1}, E_{K2}) + \\ & + P_{L1} P_{L2} G(E_{L1}, E_{L2}) + P_{K1} P_{Y2} G(E_{K1}) + P_{L1} P_{Y2} G(E_{L1}) + \\ & + P_{Y1} P_{K2} G(E_{K2}) + P_{Y1} P_{L2} G(E_{L2}) \end{aligned} \quad (3.4.22)$$

Cuando se desprecia únicamente la interacción de la radiación gamma con el detector y, sin embargo, se tienen en cuenta los efectos energéticos debidos al reajuste atómico, la eficiencia de detección se podrá escribir como:

$$\xi = \xi_1 + \xi_2 \quad (3.4.23)$$

en la que:

$$\begin{aligned}
 \xi_1 = & \sum_{j=1}^{18} \sum_{i=1}^{18} \varphi(1)_j^1 \varphi(2)_i^1 G(E_{K1}, E_{K2}, E_{rj}, E_{si}) + \\
 & + \sum_{j=1}^3 \sum_{i=1}^{18} \varphi(1)_j^2 \varphi(2)_i^1 G(E_{L1}, E_{K2}, E_{rj}, E_{si}) + \\
 & + \sum_{j=1}^{18} \sum_{i=1}^3 \varphi(1)_j^1 \varphi(2)_i^2 G(E_{K1}, E_{L2}, E_{rj}, E_{si}) + \\
 & + \sum_{j=1}^3 \sum_{i=1}^3 \varphi(1)_j^2 \varphi(2)_i^2 G(E_{L1}, E_{L2}, E_{rj}, E_{si}) \quad (3.4.24)
 \end{aligned}$$

y además

$$\begin{aligned}
 \xi_2 = & \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_j^1 P_{\gamma 2} G(E_{K1}, E_{rj}) + \sum_{j=1}^{18} P_{\gamma 1} \varphi(2)_j^1 G(E_{K2}, E_{rj}) + \\
 & + \sum_{i=1}^3 \varphi(1)_i^2 P_{\gamma 2} G(E_{L1}, E_{r1}) + \sum_{i=1}^3 P_{\gamma 1} \varphi(2)_i^2 G(E_{L2}, E_{r1}) \quad (3.4.25)
 \end{aligned}$$

Por último, se estudiará el problema en su aspecto general: es decir, considerando la conversión, el reajuste electrónico y la interacción foto-eléctrica de los rayos gamma con el líquido centelleador. Si se designa con I_1 e I_2 las probabilidades de que los fotones γ_1 y γ_2 , respectivamente, escapen del detector, la eficiencia de detección será:

$$\xi = \xi_1 + \xi_2' \quad (3.4.26)$$

donde ξ_1 es la eficiencia definida mediante (3.4.22), mientras que ξ_2' es:

$$\begin{aligned}
 \xi_2' = & \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_j^1 P_{Y2}(1-I_2) G(E_{K1}, E_{Y2}, E_{rj}) + \\
 & + \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_j^1 P_{Y2} I_2 G(E_{K1}, E_{rj}) + \sum_{j=1}^{18} \varphi(2)_j^1 P_{Y1}(1-I_1) G(E_{K2}, E_{Y1}, E_{rj}) + \\
 & + \sum_{j=1}^{18} \varphi(2)_j^1 P_{Y1} I_1 G(E_{K2}, E_{rj}) + \sum_{i=1}^3 P_{Y1} \varphi(2)_i^2 (1-I_1) G(E_{L2}, E_{Y1}, E_{r1}) + \\
 & + \sum_{i=1}^3 P_{Y1} \varphi(2)_i^2 I_1 G(E_{L2}, E_{Y1}, E_{r1}) + \\
 & + \sum_{i=1}^3 \varphi(1)_i^2 P_{Y2}(1-I_2) G(E_{L1}, E_{Y2}, E_{r1}) + \\
 & + \sum_{i=1}^3 \varphi(1)_i^2 P_{Y2} I_2 G(E_{L1}, E_{Y2}, E_{r1}) + \\
 & + P_{Y1} P_{Y2}(1-I_1)(1-I_2) G(E_{Y1}, E_{Y2}) + P_{Y1} P_{Y2}(1-I_1) I_2 G(E_{Y1}) + \\
 & + P_{Y1} P_{Y2}(1-I_2) I_1 G(E_{Y2}) \quad (3.4.27)
 \end{aligned}$$

Las expresiones (3.4.22) y (3.4.23) se reducen a la (3.4.7) y (3.4.13) respectivamente, cuando el coeficiente de conversión de una de las dos transiciones es despreciable. Por ejemplo, si $P_{K1} = P_{L1} = 0$, entonces $P_{Y1} = 1$ y $\varphi(1)_j^1 = \varphi(1)_j^2 = 0$.

Para pasar de la fórmula (3.4.26) a la (3.4.17) será necesario, además, hacer $I_1 = 0$ y $E_{Y1} = 0$.

Si las energías de las transiciones en coincidencia son superiores a 300 keV, o si una de ellas al menos es superior a 600 keV, los efectos no lineales de la detección se pueden considerar despreciables y el cálculo se simplifica notablemente utilizando las fórmulas de coincidencia conocidas.

Por ejemplo, en el caso de dos transiciones de energías E_1 y E_2 , la eficiencia de detección será:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 - \varepsilon_1 \varepsilon_2 \quad (3.4.28)$$

en la que ε_1 y ε_2 son, respectivamente, las eficiencias de detección en el caso de la transición de energía E_1 y de energía E_2 .

3.5 EFICIENCIA DE DETECCION DE EMISORES BETA SIMPLES EN EQUILIBRIO RADIATIVO

En esta memoria se considerará solamente el caso de dos nucleidos en equilibrio radiactivo; es decir, cuando un nucleido sea precursor de otro y el primero posea un período de semidesintegración mayor que el segundo.

Desde el punto de vista experimental se supondrá que es posible obtener el número N_T de cuentas totales, debidas a los dos nucleidos, por unidad de tiempo. Y el problema que se plantea es la determinación de la actividad de cada uno de los nucleidos.

Teóricamente, en principio, es posible calcular las eficiencias de detección ε_1 y ε_2 de cada uno de ellos según los métodos descritos anteriormente.

Si λ_1 y λ_2 designan las constantes de desintegración de cada uno de los nucleidos, sus actividades se obtendrán fácilmente a partir de las expresiones:

$$\lambda_1 = \frac{N_T}{\varepsilon_1 + \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \varepsilon_2} \quad (3.5.1)$$

$$\xi_2 = \frac{N_T}{\epsilon_1 \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_2} + \epsilon_2} \quad (3.5.2)$$

En los equilibrios radiactivos, en los cuales $\lambda_2 \gg \lambda_1$, se tendrá que:

$$A_1 = A_2 = \frac{N_T}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \quad ((3.5.3))$$

En esta memoria se estudiarán los equilibrios radiactivos del ^{90}Sr - ^{90}Y y del ^{144}Ce - ^{144}Pr ; la primera pareja son emisores beta simples y la segunda un emisor beta complejo y otro beta simple.

Para el ^{90}Sr - ^{90}Y , el equilibrio, desde el instante en que se aísla el ^{90}Sr , se produce al cabo de un tiempo del orden de un mes (el período de semidesintegración del ^{90}Y es $T_{1/2} = 64,1$ horas). En el equilibrio, la actividad del ^{90}Y es igual a la del ^{90}Sr y por lo tanto se utilizará la fórmula - (3.5.3). Todo esto es válido para el ^{144}Ce - ^{144}Pr , con la sola excepción de que el tiempo necesario para obtener el equilibrio es del orden de 3 horas.

En ambos casos se compararán las eficiencias medias $\bar{\epsilon}$, teóricas y experimentales

$$\bar{\epsilon} = \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{2} \quad (3.5.4)$$

3.6 EFICIENCIA DE DETECCION DE EMISORES BETA-GAMMA

En el caso de la emisión beta, seguida de una o más transiciones gamma, el cálculo de la eficiencia de detección se complica. En el presente estudio se considerarán dos casos: a) que la emisión beta-gamma sea coincidente, en relación con el tiempo de resolución del sistema espectrométrico; b) que

la emisión gamma esté retardada respecto a la beta, de modo que no sean coincidentes dentro del tiempo de resolución. En ambos casos, y para una mayor generalidad, se supondrá que la transición gamma está parcialmente convertida. Por ser más sencillo el caso b) será el primero que estudiaremos.

3.6.1 Emisión beta-gamma retardada

Supóngase un esquema de desintegración con una estructura similar al de la fig. 5 en el que se ha representado un nucleido genérico ${}^A_Z X$ que por emisión beta negativa pasa a un estado excitado-isómero- ${}^{Am}_{Z+1} Y$, que se desexcita por emisión gamma o por conversión interna.

La eficiencia de detección, en esta situación, es la debida a dos nucleidos que están en equilibrio:

$$\xi = \frac{1}{2} \left(\xi_{\beta} + \frac{\alpha_t}{1+\alpha_t} \xi_c + \frac{1}{1+\alpha_t} \xi_{\gamma} \right) \quad (3.6.1)$$

en la que:

α_t = coeficiente de conversión total
($K+L+M \dots$)

ξ_{β} = eficiencia de detección beta

ξ_c = eficiencia de detección para la conversión interna

ξ_{γ} = eficiencia de detección de los fotones gamma

La expresión desarrollada de ξ_{β} es:

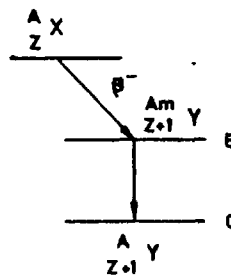


Fig. 5. Esquema con un estado isomero

$$\xi_c = \int_0^{E_m} N(E) \left\{ 1 - \exp \left[- \frac{1}{2\mu} E S_0(E) \right] \right\}^2 dE \quad (3.6.2)$$

con $N(E)$ obtenida de (3.2.1). Tanto ξ_c como ξ_v se han obtenido anteriormente (ver (3.4.18) y (3.4.19) o (3.4.15)). En el caso que nos ocupa, la expresión (3.4.19) se escribirá sin el factor P , ya que está incluido en (3.6.1).

3.6.2 Emisión beta-gamma en coincidencia

Un tratamiento distinto requiere el cálculo de la eficiencia, cuando la desexcitación gamma es simultánea con la emisión beta.

La expresión que permite calcular la eficiencia total es la siguiente:

$$\begin{aligned} \xi = & \sum_{j=1}^{18} \varphi_j^1 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{CK}, E_{1j}) dE + \\ & + \sum_{j=1}^3 \varphi_j^2 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{CL}, E_{1j}) dE + (1-I_\gamma) P_\gamma \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_\gamma) dE + \\ & + I_\gamma P_\gamma \int_0^{E_m} N(E) G(E) dE \end{aligned} \quad (3.6.3)$$

donde $N(E)$ es la distribución de partículas beta (ver (3.2.1)) y $G(E)$ se ha definido en el apartado 3.4.2, fórmula (3.4.21).

La fórmula (3.6.3) puede sufrir notables simplificaciones en ciertos casos particulares de interés en las aplicaciones:

a) Conversión despreciable

Cuando la conversión es despreciable, la expresión (3.6.3) se reduce a:

$$\begin{aligned} \xi = & (1-I_Y) P_Y \int_0^{E_{\max}} N(E) G(E, E_Y) dE + \\ & + I_Y P_Y \int_0^{E_{\max}} N(E) G(E) dE \end{aligned} \quad (3.6.4)$$

donde $P_Y = 1$.

Si además la energía E_Y es bastante elevada ($E_Y > 400$ keV), lo cual - está de acuerdo con la condición de conversión despreciable, se tiene que:

$$G(E, E_Y) \simeq 1 \quad \text{y como} \quad \int_0^{E_{\max}} N(E) dE = 1$$

y por lo tanto:

$$\xi \simeq (1-I_Y) + I_Y \int_0^{E_{\max}} N(E) G(E) dE = (1-I_Y) + I_Y \xi_C \quad (3.6.5)$$

b) Energía de conversión elevada

En este caso

$$G(E, E_{CK}, E_{ij}) \simeq 1; \quad G(E, E_{CL}, E_{ij}) \simeq 1; \quad G(E, E_Y) \simeq 1$$

Por lo tanto:

$$\begin{aligned} \xi & \simeq P_C + (1-I_Y) P_Y + I_Y P_Y \int_0^E N(E) G(E) dE = \\ & = P_C + (1-I_Y) P_Y + I_Y P_Y \xi_C \end{aligned} \quad (3.6.6)$$

3.6.3 Emisión beta compleja

Consideraremos como emisores beta complejos aquellos radionucleidos que

por desintegración beta pueden pasar a niveles excitados y por transición gamma, posterior, al estado fundamental.

En la fig. 6 se ha representado un caso simple de este tipo de nucleidos que permite una fácil generalización. La eficiencia de detección, en el caso de que las partículas β_2^- sean coincidentes con la transición de energía E, se puede calcular mediante la siguiente fórmula:

$$\xi = (1-R) \xi_{\beta_1} + R \xi_{\beta_2\gamma} \quad (3.6.7)$$

en la que ξ_{β_1} se obtiene mediante la fórmula (3.2.28) y $\xi_{\beta_2\gamma}$ mediante la fórmula (3.6.3). R es la tasa de β_2^- .

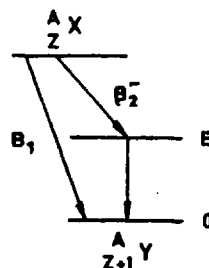


Fig. 6. Esquema con emisión β compleja

Si la emisión β_2^- no es coincidente con la transición de energía E, la eficiencia de detección se puede calcular mediante la expresión:

$$\xi = \frac{1}{1+R} \left[(1-R) \xi_{\beta_1} + R \left(\xi_{\beta_2} + \frac{\alpha_t}{1+\alpha_t} \xi_0 + \frac{1}{1+\alpha_t} \xi_\gamma \right) \right] \quad (3.6.8)$$

donde R es el número de partículas β_2^- , emitidas por cada desintegración.

La fórmula (3.6.8) se ha utilizado para calcular los valores de la eficiencia en el caso del ^{137}Cs , que se estudiará desde el punto de vista experimental en el apartado 5.5.1.

Cuando la emisión β va seguida de dos transiciones gamma, con conversión en coincidencia, tal como se representa en la fig. 7, la expresión que

da la eficiencia de detección es la siguiente:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 + \varepsilon_4 \quad (3.6.9)$$

donde ε_1 es:

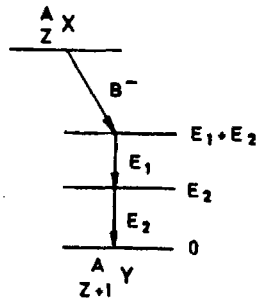


Fig.7. Esquema con dos fotones γ en coincidencia

$$\begin{aligned} \varepsilon_1 = & \sum_{j=1}^{18} \sum_{l=1}^{18} \varphi(1)_j^1 \varphi(2)_l^2 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K1}, E_{K2}, E_{rj}, E_{sl}) dE + \\ & + \sum_{j=1}^3 \sum_{m=1}^3 \varphi(1)_j^2 \varphi(2)_m^2 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L1}, E_{L2}, E_{r1}, E_{sm}) dE + \\ & + \sum_{j=1}^{18} \sum_{l=1}^3 \varphi(1)_j^1 \varphi(2)_l^2 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K1}, E_{L2}, E_{rj}, E_{sl}) dE + \\ & + \sum_{l=1}^3 \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_l^2 \varphi(2)_j^1 \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L1}, E_{K2}, E_{r1}, E_{sj}) dE \quad (3.6.10) \end{aligned}$$

y corresponde a la situación en la cual la emisión beta es coincidente con la conversión interna de γ_1 y γ_2 . El cálculo de ε_2 se realiza mediante la fórmula:

$$\begin{aligned} \varepsilon_2 = & \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_j^1 P_{\gamma_2} (1 - I_{\gamma_2}) \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K1}, E_{\gamma_2}) dE + \\ & + \sum_{l=1}^3 \varphi(1)_l^2 P_{\gamma_2} (1 - I_{\gamma_2}) \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L1}, E_{\gamma_2}, E_{r1}) dE + \\ & + \sum_{j=1}^{18} \varphi(1)_j^1 P_{\gamma_2} I_{\gamma_2} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K1}, E_{\gamma_2}, E_{rj}) dE + \\ & + \sum_{l=1}^3 \varphi(1)_l^2 P_{\gamma_2} I_{\gamma_2} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L1}, E_{\gamma_2}, E_{r1}) dE \quad (3.6.11) \end{aligned}$$

La eficiencia ξ_2 corresponde a la coincidencia de las partículas beta con los electrones convertidos de la transición de energía E_1 y con los gamma no convertidos de la transición de energía E_2 .

De la misma forma, sin más que el subíndice 1 por el 2 y viceversa se obtiene ξ_3 .

$$\begin{aligned} \xi_3 = & \sum_{j=1}^{18} \varphi(2)_j^1 P_{Y1} (1-I_{Y1}) \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K2}, E_{Y1}, E_{rj}) dE + \\ & + \sum_{i=1}^3 \varphi(2)_i^2 P_{Y1} (1-I_{Y1}) \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L2}, E_{Y1}, E_{ri}) dE + \\ & + \sum_{j=1}^{18} \varphi(2)_j^1 P_{Y1} I_{Y1} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{K2}, E_{Y1}, E_{rj}) dE + \\ & + \sum_{i=1}^3 \varphi(2)_i^2 P_{Y1} I_{Y2} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{L2}, E_{Y1}, E_{ri}) dE \end{aligned} \quad (3.6.12)$$

Esta eficiencia resulta de la coincidencia de las partículas beta con los fotones gamma de energía E_1 y con los electrones convertidos en la transición de energía E_2 .

Por último, la eficiencia ξ_4 resulta de tener en cuenta la coincidencia de las partículas beta con los fotones γ_1 y γ_2 , no convertidos:

$$\begin{aligned} \xi_4 = & P_{Y1} P_{Y2} (1-I_{Y1}) (1-I_{Y2}) \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{Y1}, E_{Y2}) dE + \\ & + P_{Y1} P_{Y2} (1-I_{Y1}) I_{Y2} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{Y1}) dE + \\ & + P_{Y1} P_{Y2} (1-I_{Y2}) I_{Y1} \int_0^{E_m} N(E) G(E, E_{Y2}) dE + \\ & + P_{Y1} P_{Y2} I_{Y2} I_{Y1} \int_0^{E_m} N(E) G(E) dE \end{aligned} \quad (3.6.13)$$

El ^{60}Co es un nucleido que presenta un esquema de desintegración (ver fig. 8) similar al considerado anteriormente, aunque con notables simplificaciones. Puesto que las dos transiciones gamma no están convertidas de modo apreciable, tendremos que:

$$\epsilon_1 = \epsilon_2 = \epsilon_3 = 0 \quad (3.6.14)$$

y

$$\epsilon = \epsilon_4 \quad (3.6.15)$$

Si además se toma $E_1 \approx E_2 \approx E$ y también $I_{\gamma 1} = I_{\gamma 2} = I_\gamma$ se tiene:

$$\begin{aligned} \epsilon = & (1 - I_\gamma)^2 \int_0^E N(E) G(E, 2E_\gamma) dE + \\ & + 2(1 - I_\gamma) I_\gamma \int_0^E N(E) G(E, E_\gamma) dE + I_\gamma^2 \epsilon_\beta \end{aligned} \quad (3.6.16)$$

Además, con buena aproximación puede suponerse que tanto $G(E, 2E_\gamma)$ como $G(E, E_\gamma)$ son la unidad, para cualquier valor de E. Por lo tanto:

$$\epsilon \approx 1 - I_\gamma^2 + I_\gamma^2 \epsilon_\beta \quad (3.6.17)$$

3.7 EFICIENCIA DE DETECCIÓN EN LA CAPTURA ELECTRONICA-GAMMA

3.7.1 Transición gamma simple

Aquí, como en el caso de la emisión beta-gamma, es necesario distinguir entre la emisión gamma retardada y la coincidente.

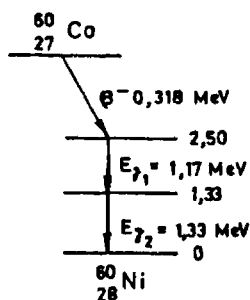


Fig. 8. Esquema de desintegración del ^{60}Co

En el caso de la desintegración por C.E. y la emisión gamma retardada (fig. 9), la eficiencia de detección será:

$$\xi = \xi_{C.E.} + \xi_{C.I.} + \xi_Y \quad (3.7.1)$$

donde $\xi_{C.E.}$ se obtiene de (3.3.5) y según la función G se puede escribir:

$$\xi_{C.E.} = \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(1) G(E_{1j}) \quad (3.7.2)$$

El superíndice s corresponderá a un proceso K, si $1 \leq j \leq 18$ o a un proceso L, si $18 < j \leq 21$. Las funciones $\varphi_j^s(1)$ serán las definidas en la tabla I.

De la misma forma:

$$\xi_{C.I.} = \sum_{i=1}^{21} \varphi_i^s(2) G(E_{r1}) \quad (3.7.3)$$

En esta última expresión las funciones $\varphi_i^s(2)$ son las definidas en la tabla I.

Finalmente, la eficiencia debida a los fotones gamma será:

$$\xi_Y = P_Y \int_0^{E_Y} B(E) G(E) dE \quad (3.7.4)$$

donde $B(E)$ es la distribución de los electrones generados en la interacción gamma por cualquiera de los efectos de interacción.

Cuando a la captura electrónica le siga una transición gamma convertida,

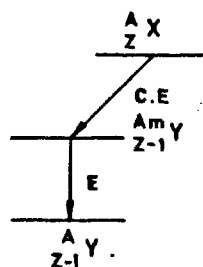


Fig. 9. Estado isomero en la C.E.

en coincidencia, el cálculo de la eficiencia de detección se complica. En la fig. 10 se ha representado un esquema de desintegración típico.

La eficiencia de detección, ε , se escribirá como:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 \quad (3.7.5)$$

siendo:

$$\varepsilon_1 = \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \varphi_j^s(1) \varphi_i^s(2).$$

$$G(E_s, E_{rj}, E_{si}) \quad (3.7.6)$$

la eficiencia que corresponde a la coincidencia de la C.E. con los electrones convertidos. E_s es la energía del electrón convertido y corresponde a E_K cuando $1 \leq j \leq 18$ y a E_L cuando $19 \leq j \leq 21$. E_{rj} está ligada a la captura electrónica y E_{si} a la conversión interna.

La eficiencia ε_2 se obtiene a partir de la expresión:

$$\begin{aligned} \varepsilon_2 = & \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(1) P_\gamma (1-I_\gamma) G(E_{rj}, E_\gamma) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s P_\gamma I_\gamma G(E_{rj}) \end{aligned} \quad (3.7.7)$$

donde P_γ es la probabilidad por desintegración de que se emita un fotón gamma, e I_γ la probabilidad de que el fotón escape del detector; por lo tanto, $P_\gamma I_\gamma$ es la probabilidad por desintegración de que un fotón gamma no sea detectado y $P_\gamma(1-I_\gamma)$ de que lo sea.

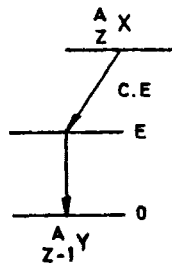


Fig.10. Captura electrónica y emisión γ en coincidencia

Un ejemplo típico de nucleido, al que se le puede aplicar la fórmula - (3.7.5) lo constituye el $^{125}_{53}\text{I}$, cuyo esquema se ha representado en la fig. 11.

3.7.2 Transición gamma doble

El estudio detallado de este tipo de esquemas de desintegración (ver fig. 12) es básico para analizar esquemas más complicados. Tres casos pueden darse en este tipo de esquemas: primero que el nucleido que se desintegra por captura electrónica de lugar a un nucleido isómero con una energía de excitación E_1 ; segundo, que el estado isómero sea el E_2 ; y, por último, que la C.E. y las dos transiciones gamma sean coincidentes. En los tres casos se supondrá que las transiciones gamma están parcialmente convertidas.

Cuando E_1 es un estado isómero la eficiencia de detección es simplemente

$$\epsilon = \epsilon_{C.E.} + \epsilon_{\gamma\gamma} \quad (3.7.8)$$

donde $\epsilon_{C.E.}$ se obtiene a partir de la fórmula (3.3.5) que, según la nomenclatura utilizada en este apartado, se puede escribir como:

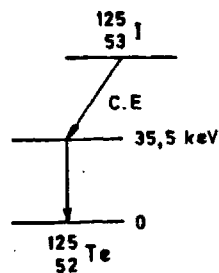


Fig. 11. Esquema de desintegración del ^{125}I

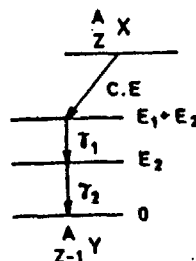


Fig. 12. Captura electrónica y transición gamma doble en coincidencia

$$\varepsilon_{C.E.} = \sum_{j=1}^{21} \varphi_j G(E_{1j}) \quad (3.7.9)$$

y ε_{YY} será la eficiencia de detección de una transición isomérica doble. - Las fórmulas que permiten calcular ε_{YY} son la (3.4.26) junto con la (3.4.24) y la (3.4.27).

Si el estado isomérico es el E_I , la eficiencia de detección será:

$$\varepsilon = \varepsilon_{CY} + \varepsilon_I \quad (3.7.10)$$

donde ε_{CY} es la eficiencia de detección cuando la C.E. es coincidente con una transición gamma (véase las fórmulas (3.7.5), (3.7.6) y (3.7.7)) y ε_I se obtiene a partir de (3.7.4).

La situación más interesante y también más compleja es aquella en que la captura electrónica es coincidente con las dos transiciones gamma. La eficiencia de detección ε se puede considerar como la adición de cuatro su mandos:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 + \varepsilon_4 \quad (3.7.11)$$

El primero corresponde a la coincidencia de la captura electrónica con la conversión de las dos transiciones gamma

$$\varepsilon_1 = \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \sum_{l=1}^{21} \varphi_j(0) \varphi_i^s(1) \varphi_l^s(2) G(E_{c1}^s, E_{c2}^s, E_{rj}, E_{si}, E_{ml}) \quad (3.7.12)$$

en la cual $\varphi_j(0)$ es la función según la vía j de C.E., $\varphi_i(1)$ es la función según la vía i de la conversión interna (C.I.) de la transición de energía E_1 y $\varphi_l(2)$, la función según la vía l de la C.I. de la transición de energía E_2 . Por otra parte, E_{c1}^s y E_{c2}^s son las energías de los electrones de conversión y E_{rj} , E_{si} y E_{ml} las energías debidas al reajuste atómico en la C.E. y en las C.I., respectivamente.

La eficiencia debida a la C.I. de la transición de energía E_1 y a la - desexcitación gamma de la transición de energía E_2 es:

$$\begin{aligned} \varepsilon_2 = & \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \varphi_j^s(0) \varphi_i^s(1) P_{Y2}(1-I_{Y2}) G(E_{c1}^s, E_{rj}, E_{Y2}, E_{s1}) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \varphi_j^s(0) \varphi_i^s(1) P_{Y2} I_{Y2} G(E_{c1}^s, E_{rj}, E_{s1}) \end{aligned} \quad (3.7.13)$$

De la misma forma, la eficiencia debida a la coincidencia entre los electro- nes de conversión de la transición E_2 y la gamma no convertida, γ_1 , es:

$$\begin{aligned} \varepsilon_3 = & \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \varphi_j^s(0) \varphi_i^s(2) P_{Y1}(1-I_{Y1}) G(E_{c2}^s, E_{rj}, E_{s1}, E_{Y1}) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \sum_{i=1}^{21} \varphi_j^s(0) \varphi_i^s(2) P_{Y1} I_{Y2} G(E_{c2}^s, E_{rj}, E_{s1}) \end{aligned} \quad (3.7.14)$$

Por último, la contribución a la eficiencia por parte de las coinciden- cias entre los dos gammas es:

$$\begin{aligned} \varepsilon_4 = & \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(0) P_{Y1} P_{Y2}(1-I_{Y1})(1-I_{Y2}) G(E_{Y1}, E_{Y2}, E_{rj}) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(0) P_{Y1} P_{Y2}(1-I_{Y1}) I_{Y2} G(E_{Y1}, E_{rj}) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(0) P_{Y1} P_{Y2}(1-I_{Y2}) I_{Y1} G(E_{Y2}, E_{rs}) + \\ & + \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s(0) P_{Y1} P_{Y2} I_{Y1} I_{Y2} G(E_{rs}) \end{aligned} \quad (3.7.15)$$

Con las expresiones obtenidas en este subapartado y en el precedente, es factible calcular la eficiencia de detección de nucleidos más complejos que los estudiados hasta aquí; por ejemplo, los esquemas con tres C.E. de energía diferente que van a distintos niveles de energía y que se desexcitan emitiendo dos, uno o ningún fotón gamma.

3.7.3 Transiciones gamma multiples

El caso general de la desintegración por C.E. seguida de n transiciones gamma, parcialmente convertidas, en coincidencia, es bastante fácil de formular, teniendo en cuenta los casos anteriormente estudiados.

A fin de aligerar las fórmulas, se definirán 21m funciones de conversión, $\varphi(i, j)$. El índice i se refiere al número que corresponde a la transición en la cascada $i = 1, 2, 3 \dots n$; y el j , a la vía de reestructuración atómica. Además, se definirán las nuevas funciones:

$$\varphi(i, 22) \equiv P_Y(i) (1 - I_Y(i)) \quad (3.7.16)$$

$$\varphi(i, 23) \equiv P_Y(i) I_Y(i) \quad (3.7.17)$$

que corresponden a $j = 22$ y $j = 23$.

La eficiencia de detección, ϵ , se calculará mediante la expresión:

$$\epsilon = \sum_{j=1}^{21} \sum_{j_1=1}^{23} \dots \sum_{j_n=1}^{23} \varphi(j) \left\{ \prod_{i=1}^n \varphi(i, j_i) \right\} G(E(j), E(i, j_i)) \quad (3.7.18)$$

donde $j_1, j_2 \dots j_n$ son variables distintas ligadas a la transición correspondiente.

3.8 EFICIENCIA DE DETECCION PARA ESQUEMAS DE DESINTEGRACION COMPLEJOS

Se considerarán como esquemas de desintegración complejos aquellos en los que aparezcan dos o más formas distintas de desintegración. Por ejemplo, emisión de positrones y captura electrónica; o emisión de negatronos y captura electrónica; o captura electrónica, emisión de positrones y emisión de negatronos.

Es interesante señalar que todas las fórmulas deducidas para la emisión de negatronos son válidas en el caso de la emisión de positrones, si se tiene en cuenta que el cálculo de $N(E)$ (distribución beta) es el mismo sin más que cambiar Z por $-Z$.

Una complicación adicional es la producción de fotones de aniquilación que están en coincidencia con los positrones. Así pues, un emisor de positrones deberá considerarse como una emisión beta compleja tal como la estudiada en el apartado 3.6.3, y la fórmula de la eficiencia es la (3.6.9) junto con la (3.6.10), (3.6.11), (3.6.12) y (3.6.13). Sin embargo, el hecho de que los fotones de aniquilación no presenten conversión y que las energías de ambos sean iguales permite simplificar el cálculo.

En primer lugar, $\varepsilon_1 = 0$ y también $\varepsilon_2 = \varepsilon_3 = 0$; y como:

$$\begin{aligned} \varepsilon_4 = & P_Y^2 (1-I_Y)^2 \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_Y, E_Y) dE + 2 P_Y^2 (1-I_Y) I_Y \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_Y) dE \\ & + P_Y^2 I_Y^2 \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E) dE \end{aligned} \quad (2.8.1)$$

se tendrá que:

$$\begin{aligned} \varepsilon = \varepsilon_4 = & P_Y^2 (1-I_Y)^2 + 2 P_Y^2 (1-I_Y) I_Y + P_Y^2 I_Y^2 \varepsilon_{\beta}^+ = \\ = & P_Y^2 (1-I_Y^2 + I_Y^2 \varepsilon_{\beta}^+) \end{aligned} \quad (3.8.2)$$

donde ξ_{β}^+ es la eficiencia de detección de los positrones emitidos, excluyendo el proceso de aniquilación, y $P_{\gamma} = P_{\beta}^+$. Cuando a la emisión de positrones le sigue una transición gamma convertida, la expresión de la eficiencia de detección es más complicada que si se trata de la emisión de negatrones (ver subapartado 3.6.2). La fórmula que da la eficiencia de detección se puede escribir como:

$$\xi = \xi_1 + \xi_2 \quad (3.8.3)$$

donde

$$\begin{aligned} \xi_1 = & P_{\beta} P_{\gamma}^2 (1-I_{\gamma})^2 \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_c, E_{\gamma}, E_{\gamma}, E_{rj}) dE + \\ & + 2 P_{\beta} P_{\gamma}^2 (1-I_{\gamma}) I_{\gamma} \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_c, E_{\gamma}, E_{rj}) dE + \\ & + P_{\beta} P_{\gamma}^2 I_{\gamma}^2 \sum_{j=1}^{21} \varphi_j^s \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_c, E_{rj}) dE \end{aligned} \quad (3.8.4)$$

y

$$\begin{aligned} \xi_2 = & P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} (1-I_{\gamma})^2 (1-I_{\gamma 1}) \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_{\gamma}, E_{\gamma}, E_{\gamma 1}) dE + \\ & + P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} (1-I_{\gamma})^2 I_{\gamma 1} \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_{\gamma}, E_{\gamma}) dE + \\ & + 2 P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} (1-I_{\gamma 1}) (1-I_{\gamma}) I_{\gamma} \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_{\gamma}, E_{\gamma 1}) dE + \\ & + P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} (1-I_{\gamma 1}) I_{\gamma}^2 \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_{\gamma 1}) dE + \\ & + 2 P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} (1-I_{\gamma}) I_{\gamma} I_{\gamma 1} \int_0^{E_m} N(E)^+ G(E, E_{\gamma}) dE + \\ & + P_{\beta} P_{\gamma}^2 P_{\gamma 1} I_{\gamma}^2 I_{\gamma 1} \int_0^{E_{\max}} N(E)^+ G(E) dE \end{aligned} \quad (3.8.5)$$

Un caso particular, interesante, es aquel en el que la conversión interna es nula y la energía $E_{\gamma 1} > 400$ keV. Tal sucede con el ^{22}Na , en lo que a la desintegración beta positiva se refiere, donde:

$$\xi_1 = 0 \quad (3.8.6)$$

y

$$\xi = \xi_2 = P_\beta (1 - I_{\gamma 1} I_\gamma^2 + I_{\gamma 1} I_\gamma^2 \xi_\beta^+) \quad (3.8.7)$$

El factor P_γ^2 es igual a la unidad cuando se escribe P_β , ya que representa la probabilidad de que se produzcan dos fotones de aniquilación en coincidencia, cuando se emite un positrón en el seno del centelleador.

Para resolver los problemas planteados por los esquemas de desintegración complejos, se descompondrá el esquema en todas las transiciones que sean independientes, en lo que a la coincidencia se refiere.

Como ejemplo, se estudiará el esquema de desintegración del ^{22}Na que se desintegra por C.E. y por emisión beta positiva (véase la fig. 13 tomada de las tablas de Legrand y col. 1974).

El esquema se puede descomponer de la siguiente manera:

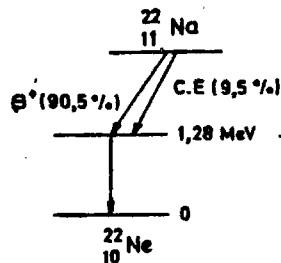


Fig.13. Esquema de desintegración del ^{22}Na

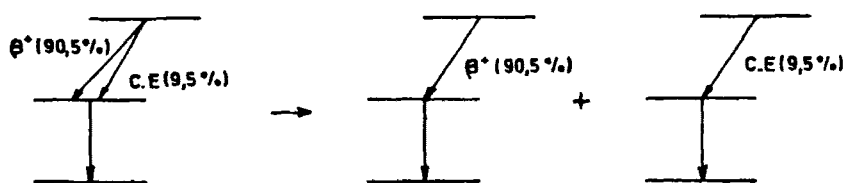


Fig. 14. Descomposición de un esquema complejo en componentes elementales

por lo que la eficiencia de detección, en el caso del ^{22}Na , se puede escribir como:

$$\varepsilon = (\varepsilon_p)_t + (\varepsilon_{C.E})_t \quad (3.8.8)$$

y más explícitamente:

$$\begin{aligned} \varepsilon = & 0,905 (1 - I_{Y1} I_Y^2 + I_{Y1} I_Y^2 \varepsilon_p^*) + \\ & + 0,095 (1 - I_{Y1} + I_{Y1} \varepsilon_{C.E}) \end{aligned} \quad (3.8.9)$$

Las eficiencias ε_p^* y $\varepsilon_{C.E}$ corresponden a los valores calculados cuando - sus respectivas transiciones son del 100%. Tanto I_{Y1} como I_Y se calculan - teóricamente, o bien se determinan experimentalmente, como se explica más - adelante.

IV. DISPOSITIVO EXPERIMENTAL

4.1 REACTIVOS QUÍMICOS Y CENTELLEADORES

A fin de comprobar la aplicación del método de cálculo a las distintas formas químicas en que puede encontrarse la sustancia radiactiva, se han ensayado tres soluciones centelleadoras distintas. Una de ellas, idónea para la incorporación de sustancias no polares, y que en adelante se designará genéricamente como "centelleador de tolueno", presenta la siguiente composición:

Tolueno	1 dm ³
P.P.O.	5 g
Dimetil-POPOP	300 mg

Si en lugar del tolueno se recurre a otro alquilbenceno, el resultado será prácticamente el mismo (Lawson y col. 1969). P.P.O. es el acrónimo de 2,5-difeniloxazol y DM-POPOP, de 1,4-bis- (4-metil-5-feniloxazol-2-il) benceno.

Para incorporar soluciones acuosas a este centelleador se han adicionado del orden de 2 cm³ de etanol absoluto por cada 100 mg de agua.

Otra solución centelleadora, que permite incorporar hasta un 10%, en volumen, de agua o de soluciones acuosas, es la que se denomina "centelleador de dioxano". Muchos de los centelleadores a base de dioxano son variantes de la solución de Bray 1960, constituida por naftaleno, PPO, POPOP, metanol y etilenglicol, en dioxano. El metanol y los monometil y monoetil-éteres del etilenglicol suelen utilizarse para reducir el punto de congelación de los centelleadores de dioxano (Polensky y col. 1965 y Lerch y col. 1966). La interpretación de la transferencia energética en este tipo de centelleadores ha sido dada por Germai 1970.

La composición del centelleador aquí utilizado es la siguiente:

Dioxano	880 cm ³
Naftaleno	60 g
Metanol	100 cm ³
Etilenglicol	20 cm ³
PPO	4 g
Dimetil-POPOP	0,1 g

El tercer tipo de centelleador utilizado lleva el nombre de Insta-Gel y es un producto patentado por la firma Packard Instrument Company, Inc. Este centelleador tiene la peculiaridad de formar soluciones homogéneas para concentraciones de agua inferiores al 12% (cuando la temperatura se mantiene entre 7°C y 21°C); entre el doce y el veintidos por ciento, la muestra presenta dos fases y no es posible medir correctamente; finalmente, para concentraciones entre el veintidos y el cincuenta por ciento se forma un gel tixotrópico muy estable. En todas las medidas con Insta-Gel descritas en esta memoria se ha procurado que la solución fuera homogénea, ya que así se puede aplicar el método de calibración externa para determinar la extinción (Williams 1968).

Como sustancia extintora se ha utilizado generalmente tetracloruro de carbono y sólo en algunos casos acetona. El tetracloruro de carbono presenta la ventaja de generar fuertes extinciones sin necesidad de incorporar cantidades importantes de esta sustancia. Para el equipo utilizado en la mayoría de las experiencias y para especímenes tritiados, la concentración de semiextinción del tetracloruro de carbono es de 2 mg/cm³, y para la acetona, de 7 mg/cm³.

Con el ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr se ha recurrido a la extracción con 8-hidroxiquinoleína, más conocida como oxina. El complejo que se forma en la fase orgánica es perfectamente soluble en los tres tipos de centelleador ensayados.

En todos los casos en los que se ha requerido efectuar diluciones de las soluciones calibradas, se ha empleado el mismo tipo de diluyente que

llevaba la muestra. Lo más frecuente ha sido utilizar HCl y H_2NO_3 0,1 normales.

4.2 MÉTODOS DE PREPARACION DE MUESTRAS

Siempre que se han utilizado centelleadores de tolueno se ha recurrido a frascos de vidrio de bajo contenido en potasio. Los frascos de plástico se han rechazado en este caso porque, o bien son permeables al tolueno, o bien presentan electrización estática, que perturba la medida. Sólo cuando no se disponía de frascos de vidrio de bajo fondo, por requerirse diámetros inexistentes comercialmente, se ha recurrido a frascos de plástico; pero, en este caso, se ha empleado siempre dioxano como líquido de centelleo.

La determinación del volumen del líquido centelleador ($\sim 15 \text{ cm}^3$) se ha efectuado mediante pipetas calibradas; estas pipetas se contrastaron previamente y se comprobó que su exactitud era superior al 1%.

La sustancia radiactiva se ha incorporado al frasco detector mediante pesada en microbalanza con la ayuda de "picnómetros" de plástico.

En contadas ocasiones se ha recurrido a métodos volumétricos y, en estos casos, se han empleado micropipetas de volumen fijo de la firma Ependorff. En estas circunstancias se ha preparado un número de frascos doble del necesario. Después de incorporada la muestra radiactiva y antes de añadir el extintor se midieron todos los frascos y se rechazaron los que presentaban una desviación de la media superior a dos veces la desviación típica. Aunque de esta forma se rechazaban frascos, injustificadamente, desde el punto de vista estadístico, los admitidos formaban un colectivo más compacto.

El paso siguiente consistió en comprobar la estabilidad y la ausencia de excitación luminosa. Para ambas pruebas se recurrió a medir las muestras observándose la variación con el tiempo del recuento total de cada frasco.

En el caso de especímenes acuosos, es de temer la existencia de microcristalizaciones, precipitaciones o adsorciones; para controlar la presencia de estos fenómenos se situó una ventana de discriminación que contara la parte superior del espectro. La disminución en el tiempo del número de cuentas en esta ventana es una indicación de la existencia de alguno de los fenómenos antes mencionados.

La excitación luminosa de las muestras y la quimiluminiscencia, especialmente, se han controlado siempre en el caso de emplear centelleadores - con dioxano. En la preparación de este tipo de muestras se ha evitado tanto la luz del día como la de los tubos fluorescentes. Las principales precauciones han consistido en preparar las muestras en una cámara oscura con luz roja y en transportarlas al contador en cajas cerradas.

Para que las muestras presentaran distinta extinción se añadieron cantidades progresivamente crecientes de extintor a los diferentes frascos.

No fue posible obtener curvas reproducibles cuando se trabajó con ácido fosfórico y con fosfato disódico marcado por ^{32}P , debido a que se producían microcristalizaciones y precipitaciones que aumentaban con el tiempo. También se observó una fuerte adsorción en las paredes de vidrio que se eliminó siliconando el interior de los frascos.

Ante la dificultad de estabilizar la muestra se consiguió del laboratorio de Moléculas Marcadas, perteneciente a la Sección de Radioquímica de la JEN, el marcado con ^{32}P de un fosfato de tributilo, con el cual desaparecieron todas las dificultades anteriores.

Todos los nucleidos empleados en la presente memoria se han medido con los tres tipos de centelleadores, lo que ha obligado en algunos casos a tener que realizar manipulaciones químicas; en particular, extracciones con distintas sustancias extractantes y en diferentes condiciones de pH.

4.3 EQUIPOS DE MEDIDA

En las medidas por centelleo líquido se ha hecho uso de un espectrómetro de tres vías con amplificador logarítmico. Los distintos modelos ensayados han sido fabricados por la firma Intertechnique, y el más utilizado ha sido el modelo SL30, dotado de dos fotomultiplicadores RCA-4501V3, de bajo fondo y perteneciente a la Sección de Metrología de la JEN.

Para comprobar el carácter general del método se han realizado experiencias con otros equipos del mismo modelo de características distintas: - uno equipado con fotomultiplicadores RCA-4501, y otro con fotomultiplicadores bialcalinos de la marca EMI que, por su elevado rendimiento cuántico, - presenta la mejor respuesta desde el punto de vista de la eficiencia.

También se dan medidas para tritio y ^{14}C , realizadas con otros equipos de modelo distinto; uno perteneciente al Hospital Clínico de Barcelona, y - otro al Colegio de Farmacia de Madrid.

El valor del parámetro de extinción Q es distinto, para una misma muestra, en cada uno de los espectrómetros reseñados. A ello contribuyen tanto las diferencias en las características de los fotomultiplicadores o en las celdas de detección, como los valores de las ventanas de discriminación pre fijadas por el suministrador.

Para la calibración de algunos nucleidos emisores beta-gamma, captura electrónica-gamma y positrones-gamma, se ha recurrido a medidas relativas - por espectrometría gamma. El equipo utilizado estaba formado por los siguientes elementos: un analizador multicanal Camberra 8100; un detector de Ge(Li) coaxial, también Camberra, con una resolución de 1,99 keV para el pico de - 1332 keV del ^{60}Co , y una eficiencia relativa del 20%; una cadena de medida formada por un preamplificador Camberra 970, un amplificador Camberra 1420 y una salida de datos por perforadora rápida Facit 4070. Un ordenador PDP-11/20 permite procesar los datos obtenidos y calcular la actividad de las -

muestras.

4.4 PRECAUCIONES EXPERIMENTALES

Un punto clave en la aplicación correcta del método descrito en la presente memoria es la obtención de la curva "adecuada" para el ^3H , que ha de servir de base a la determinación de la relación entre el factor de mérito y la extinción.

Con la expresión curva "adecuada" se quiere indicar que la curva de tritio debe reflejar las condiciones electrónicas del sistema espectrométrico de centelleo líquido. Como el parámetro de extinción fluctúa con el tiempo (obsérvese la fig. 15), es necesario, al realizar la medida experimental de un nucleido cualquiera, saber si puede aplicarse una curva de tritio obtenida con anterioridad o si hay que obtener una nueva curva de tritio. A este fin, antes de iniciar una medida, se determina el valor del parámetro de extinción Q mediante un frasco sellado y sin extinción; el mismo que se haya utilizado para obtener los puntos de la fig. 15. Una colección de curvas de tritio, con sus respectivos Q de referencia, permite aplicar en cada situación la curva adecuada.

Es evidente que si, antes de iniciar la medida de una muestra, se mide un juego de muestras de tritio de extinción variable y actividad conocida, no es necesario tener en cuenta las precauciones mencionadas antes.

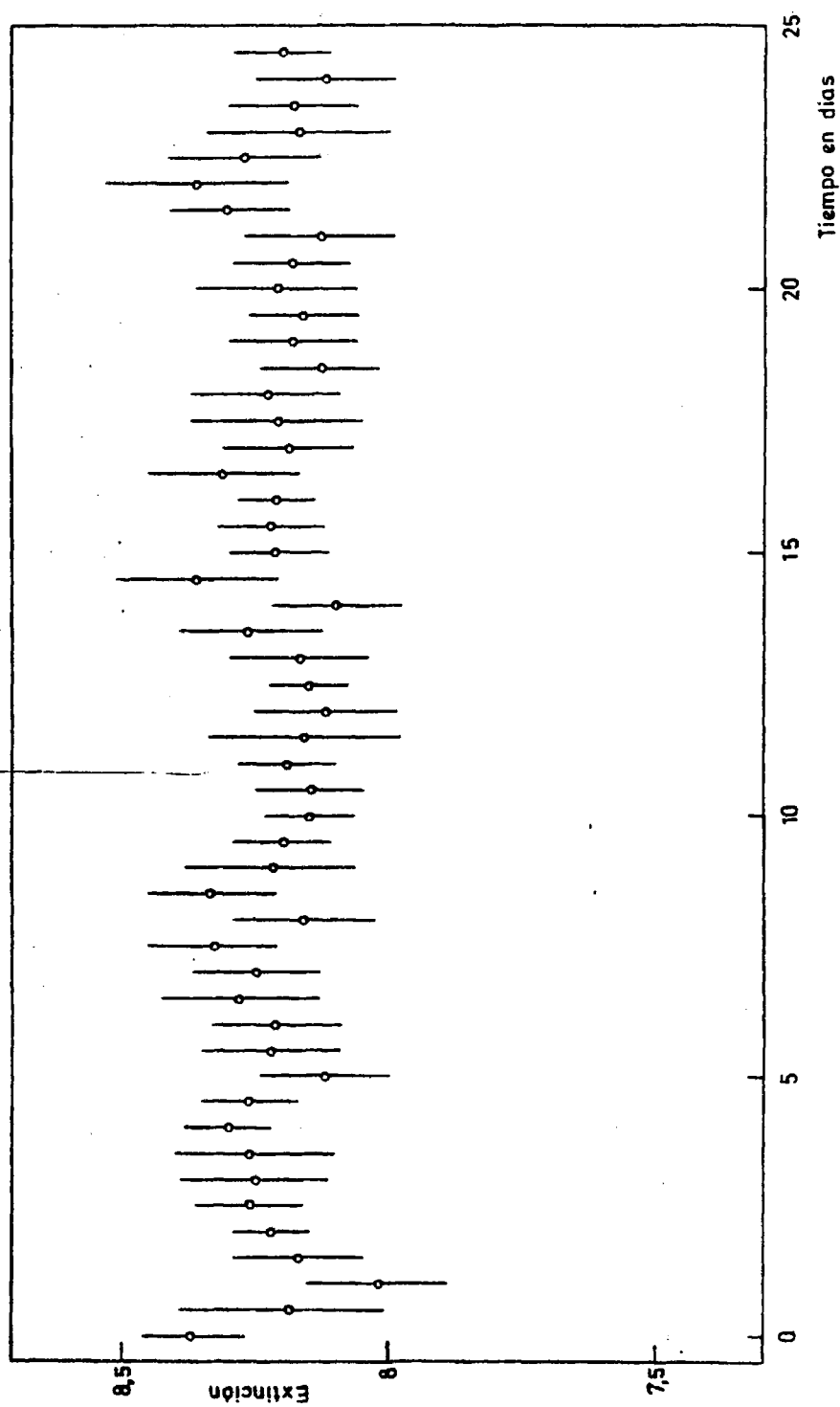


Fig. 15 - Fluctuación del parámetro de extinción en función del tiempo.

V. RESULTADOS Y DISCUSION

5.1 EMISORES BETA SIMPLES

Con este epígrafe se engloban todos aquellos nucleidos que se desintegran por una transición simple a un nivel estable. Se han seleccionado ocho nucleidos distintos. El criterio de selección se ha basado en la posibilidad de conseguir patrones de precisión aceptables (mejor del 5%). Además, - se ha procurado cubrir el intervalo de energías comprendido entre 18 keV - (^3H) y 1700 keV (^{32}P), que es el de interés desde el punto de vista práctico.

5.1.1 Tritio

El tritio es uno de los radionucleidos más utilizados en centelleo líquido y a pesar de las dificultades que presentó al principio su calibración, en la actualidad es posible obtener patrones con una incertidumbre - del 3%, al nivel de confianza de 99,7%.

En la presente memoria el tritio se empleará como patrón de referencia y permitirá relacionar el factor de mérito del centelleador, calculado teóricamente, con la extinción del mismo, obtenida experimentalmente. Este artificio evita el estudio detallado de la óptica del sistema que, además de plantear dificultades de cálculo, es distinta de un espectrómetro a otro, - con lo cual el método aquí desarrollado perdería su generalidad. Así pues, para obtener la curva de calibración (eficiencia en función de la extinción) de un nucleido cualquiera, disuelto en un centelleador determinado, es condición previa e indispensable disponer de una curva de calibración de tritio en el mismo tipo de centelleador.

En realidad, se podría haber tomado como referencia cualquier otro nucleido, pero se comprueba en la práctica que el ^3H es el idóneo, ya que los errores relativos presentes en su curva de calibración se transmiten atenua

TABLA II

Nucleidos beta simples ensayados

Nucleido	Periodo	Energía (keV)
^3H	$12,34 \pm 0,03 \text{ a}$	$18,62 \pm 0,04$
^{14}C	$5730 \pm 40 \text{ a}$	156 ± 1
^{35}S	$87,4 \pm 0,1 \text{ d}$	$167,4 \pm 0,6$
^{185}W	$75,1 \pm 0,9 \text{ d}$	432 ± 1
^{36}Cl	$(3,00 \pm 0,06) \times 10^5 \text{ a}$	$709,7 \pm 1,5$
^{204}Tl	$3,77 \pm 0,01 \text{ a}$	763 ± 1
^{89}Sr	$50,6 \pm 0,2 \text{ d}$	1478 ± 3
^{32}P	$14,30 \pm 0,02 \text{ d}$	1703 ± 1

dos en el proceso de cálculo, al contrario de lo que ocurriría si se eligieran nucleidos de mayor energía como patrones.

En la fig. 16 se ha representado, para una discrepancia de $\pm 7,5\%$ en la eficiencia del ^3H , la discrepancia, en tantos por ciento, transmitida para energías comprendidas entre 18,6 keV y 2000 keV, cuando se eligen distintas eficiencias para el tritio (51; 15; 4,2 y 1,3%). Estas curvas son biunívocas en cuanto a la transmisión de los errores.

En las figuras 17, 18 y 19 se han dibujado las curvas de calibración para el ^3H de cada uno de los centelleadores usados: tolueno, dioxano e Insta-Gel. Los puntos experimentales se han ajustado por mínimos cuadrados a un polinomio de tercer grado. Las muestras se prepararon incorporando gravimétricamente n-hexadecano marcado con ^3H calibrado por el Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra).

A fin de comprobar la validez del método descrito en esta memoria, en situaciones de medida poco frecuentes, se ha estudiado tanto la variación de la curva de calibración en función del volumen total de centelleador utilizado, como la influencia de la concentración del PPO. En la fig. 20 se representan las curvas de calibración para 2, 3, 10 y 15 cm³ de centelleador, y en la fig. 21 las curvas de calibración para concentraciones de 0,020 y 0,060 g/dm³.

Por último, para contrastar el método y estudiar su independencia del equipo de medida, se ha empleado un juego de muestras, con centelleador de tolueno, calibradas y selladas por el Radiochemical Centre de Amersham. En las figuras 22, 23 y 24 se han representado las curvas de calibración obtenidas con distintos espectrómetros. Es importante señalar que tanto la eficiencia como el parámetro de extinción dependen del espectrómetro de centelleo. Como energía máxima de este nucleido se ha adoptado el valor 18,620 \pm 0,012 keV, que es el valor promediado de los resultados publicados por Bergkvist 1972, Salgo y col. 1969, Piel y col. 1973, Daris y col. 1969, Le-

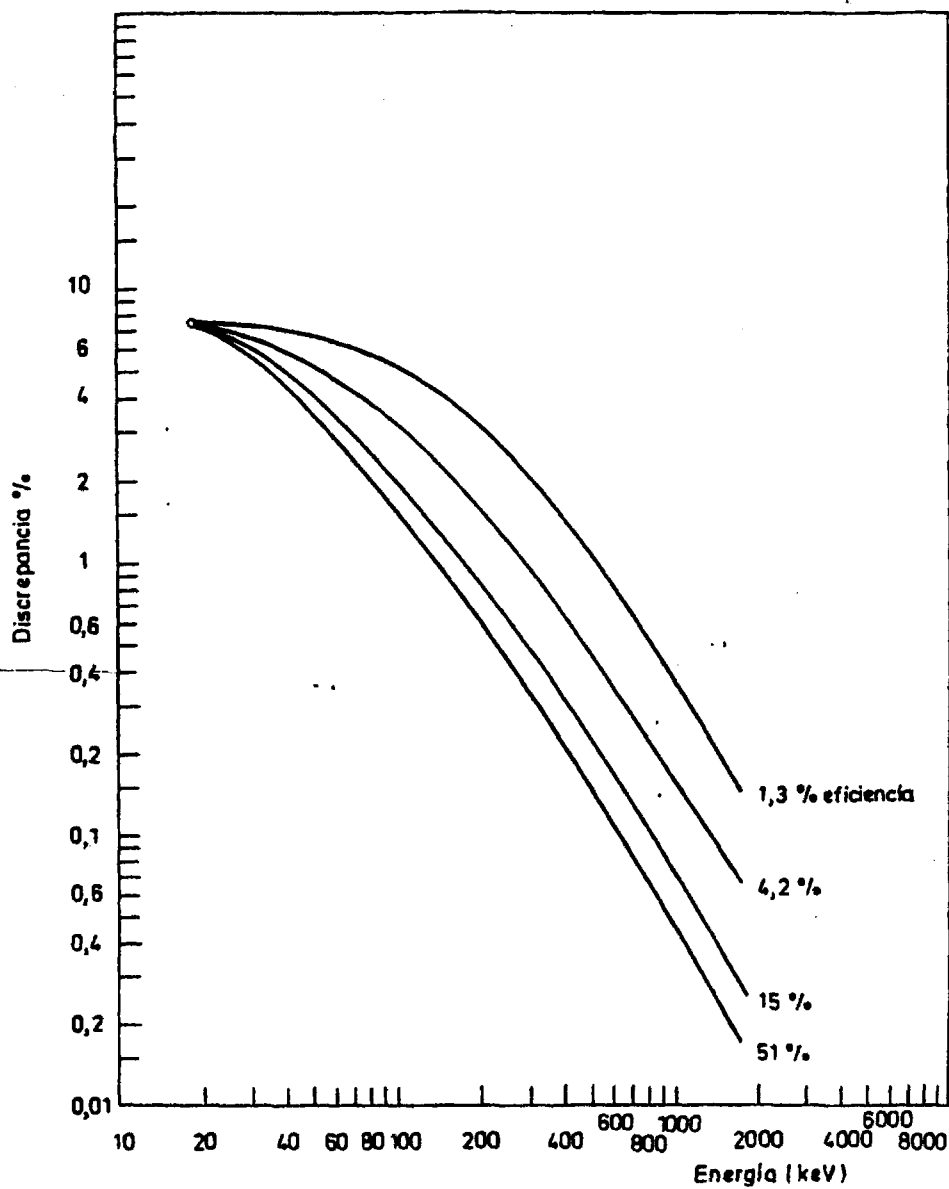


Fig. 16 - Transición de la incertidumbre cuando se toma el ^3H como referencia

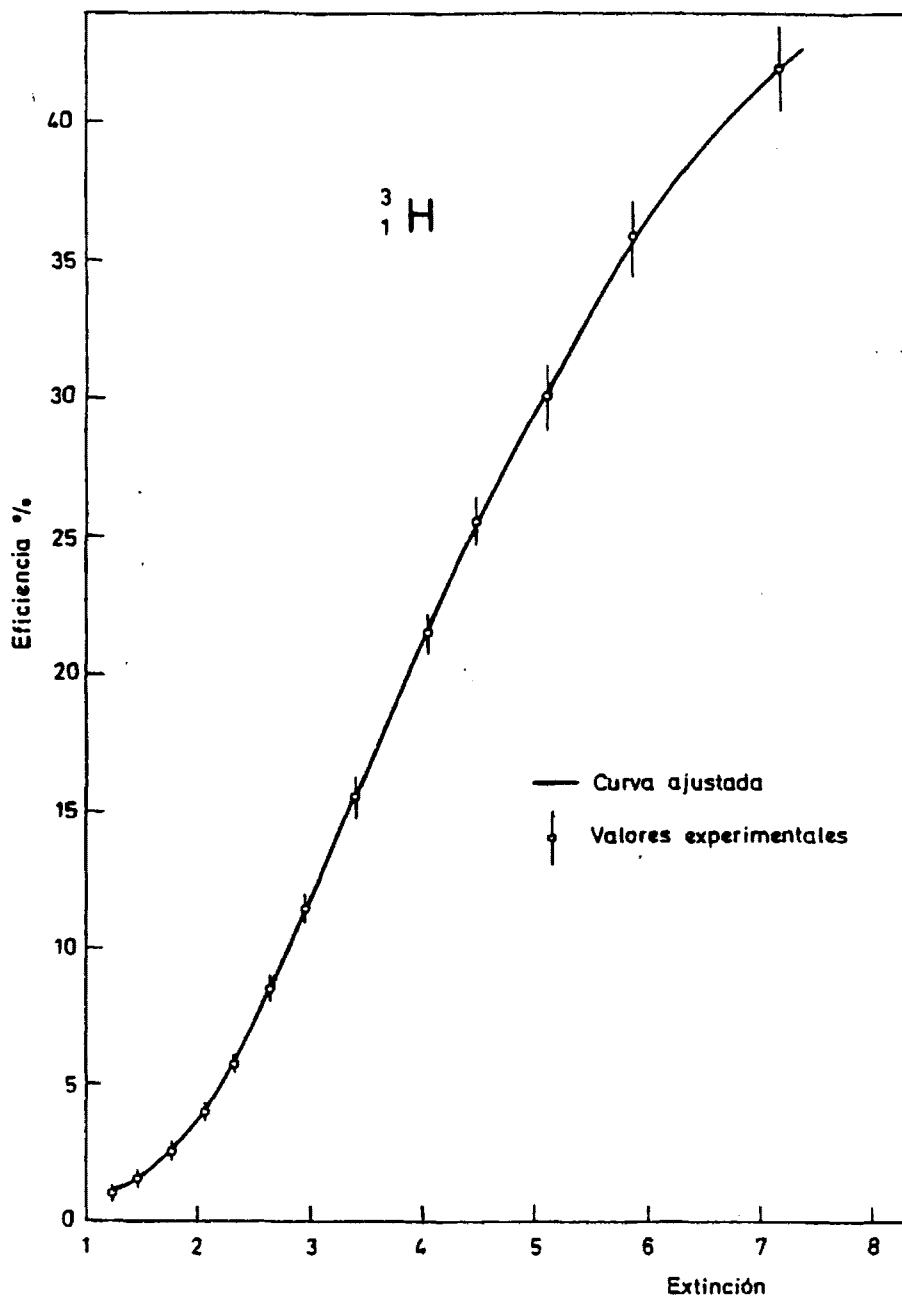


Fig. 17 - Eficiencia del ${}^3\text{H}$ en un centelleador de tolueno.

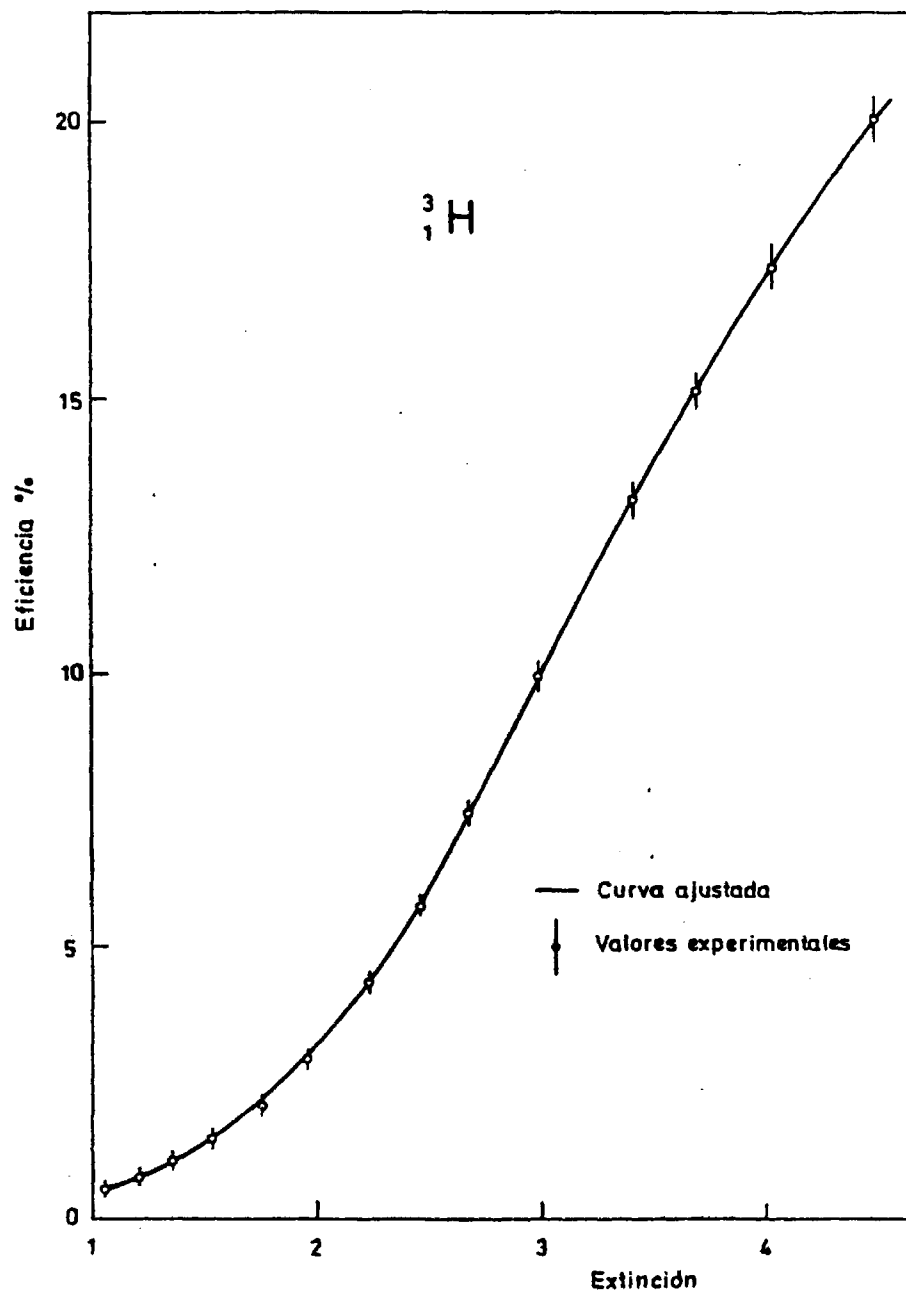


Fig. 18 - Eficiencia del ^3H en un centelleador de dioxano.

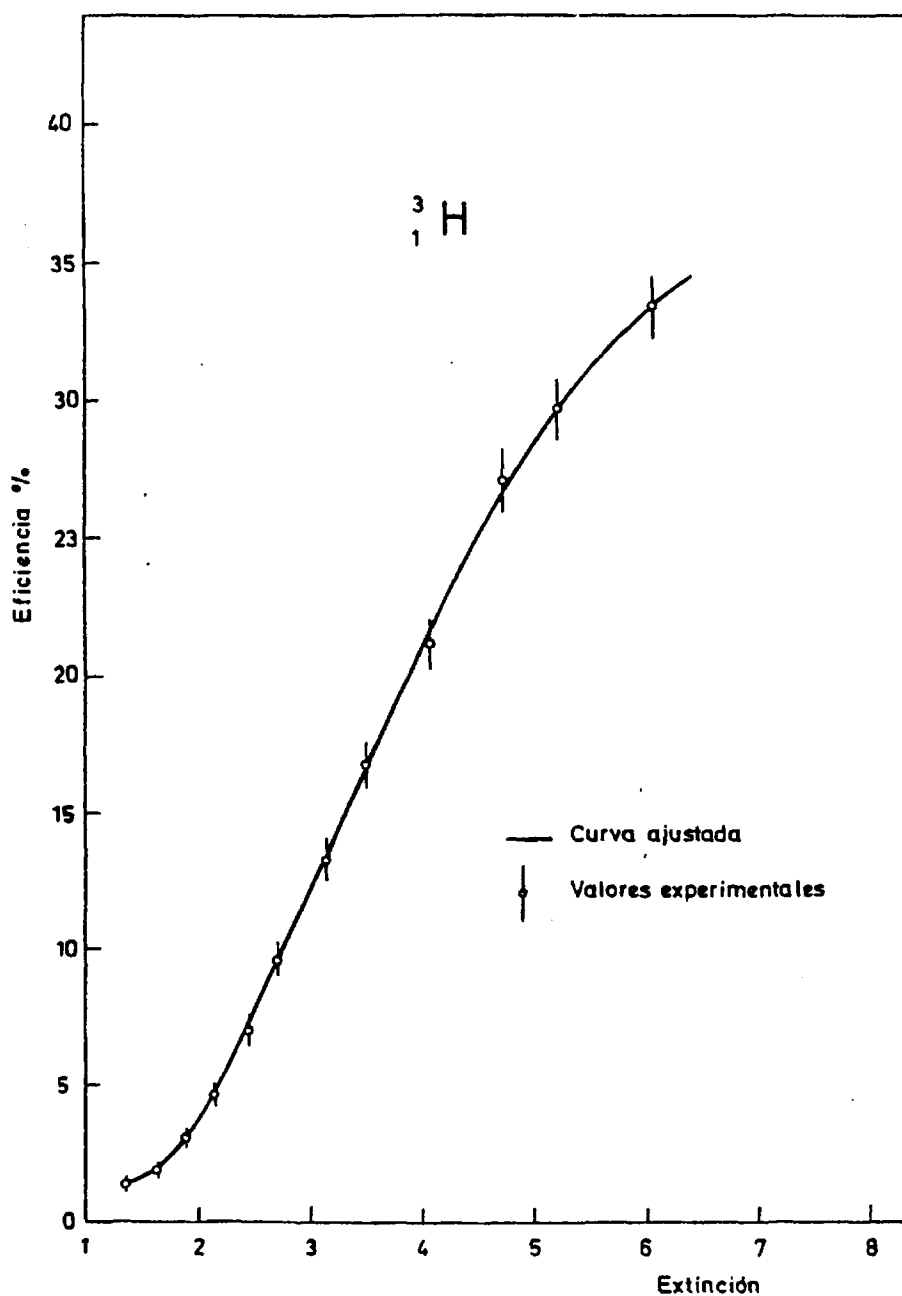


Fig. 19 - Eficiencia del ${}^3\text{H}$ en un centelleador de Insta-Gel.

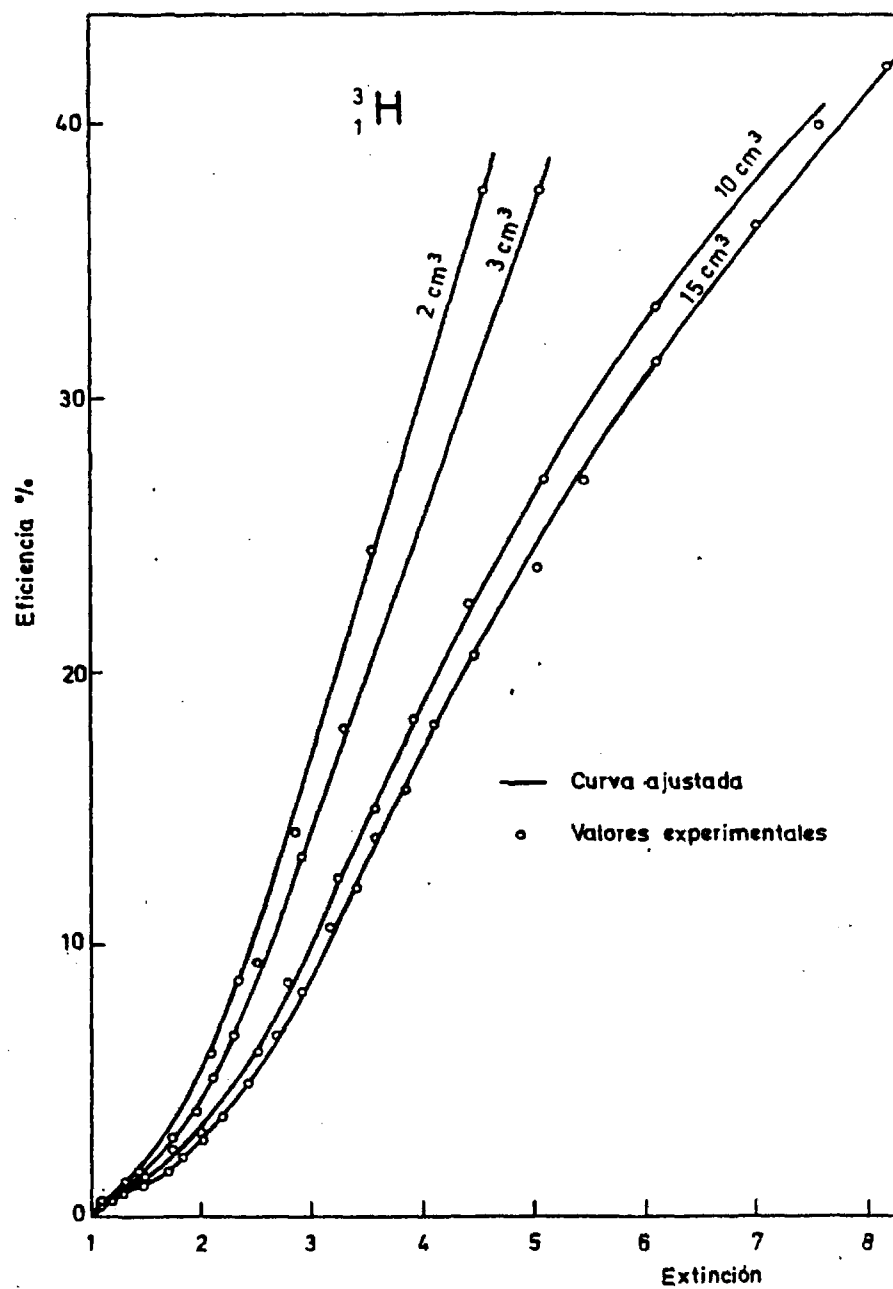


Fig. 20 - Curvas de eficiencia para distintos volúmenes de centelleador de tolueno.

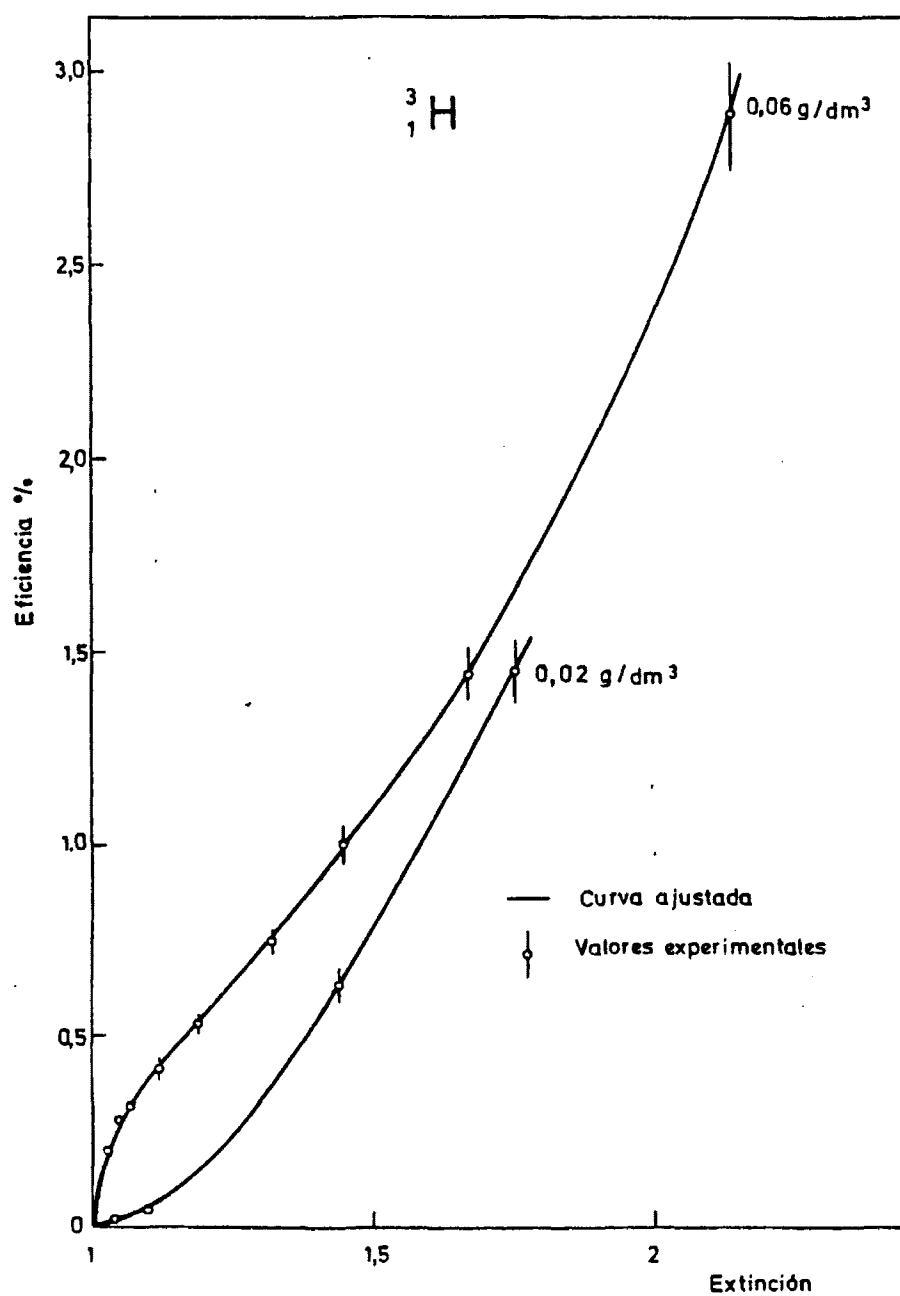


Fig. 21 - Curvas de calibración para muy bajas concentraciones de PPO.

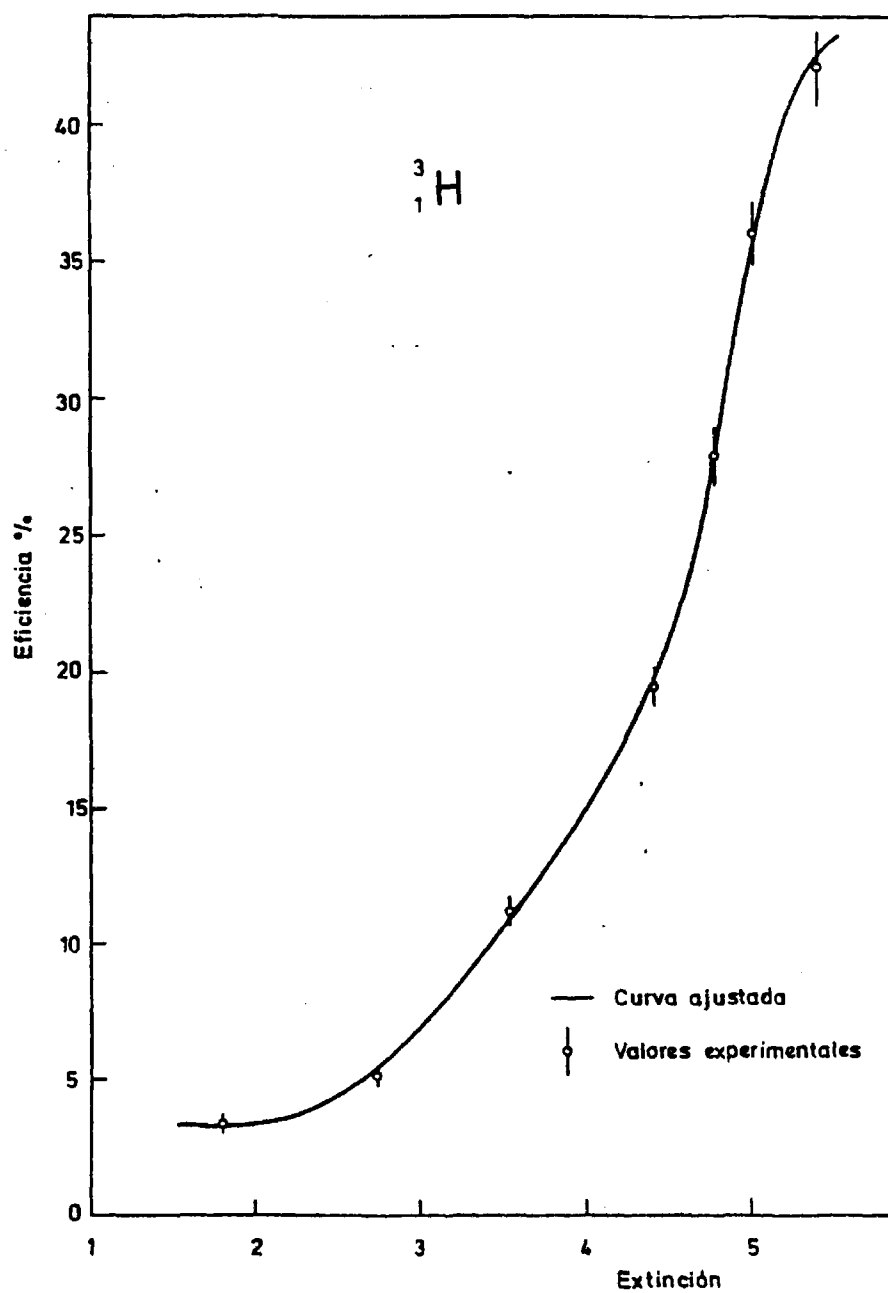


Fig. 22 - Curva de eficiencia de un espectrómetro SL-40 con fotomultiplicadores en mal estado.

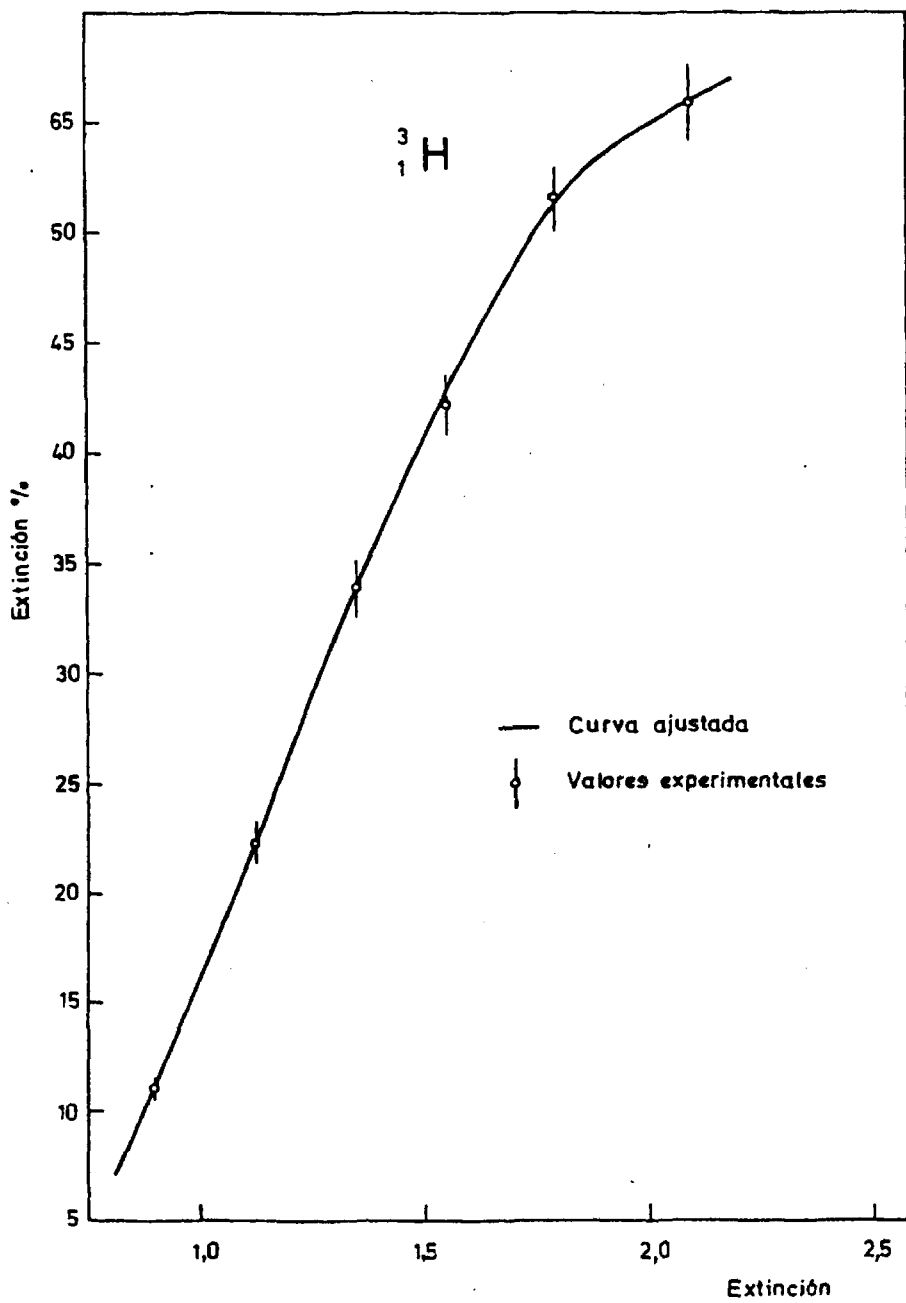


Fig. 23 - Curva de eficiencia de un espectrómetro SL-40 con fotomultiplicadores bialcalinos de elevado rendimiento cuántico.

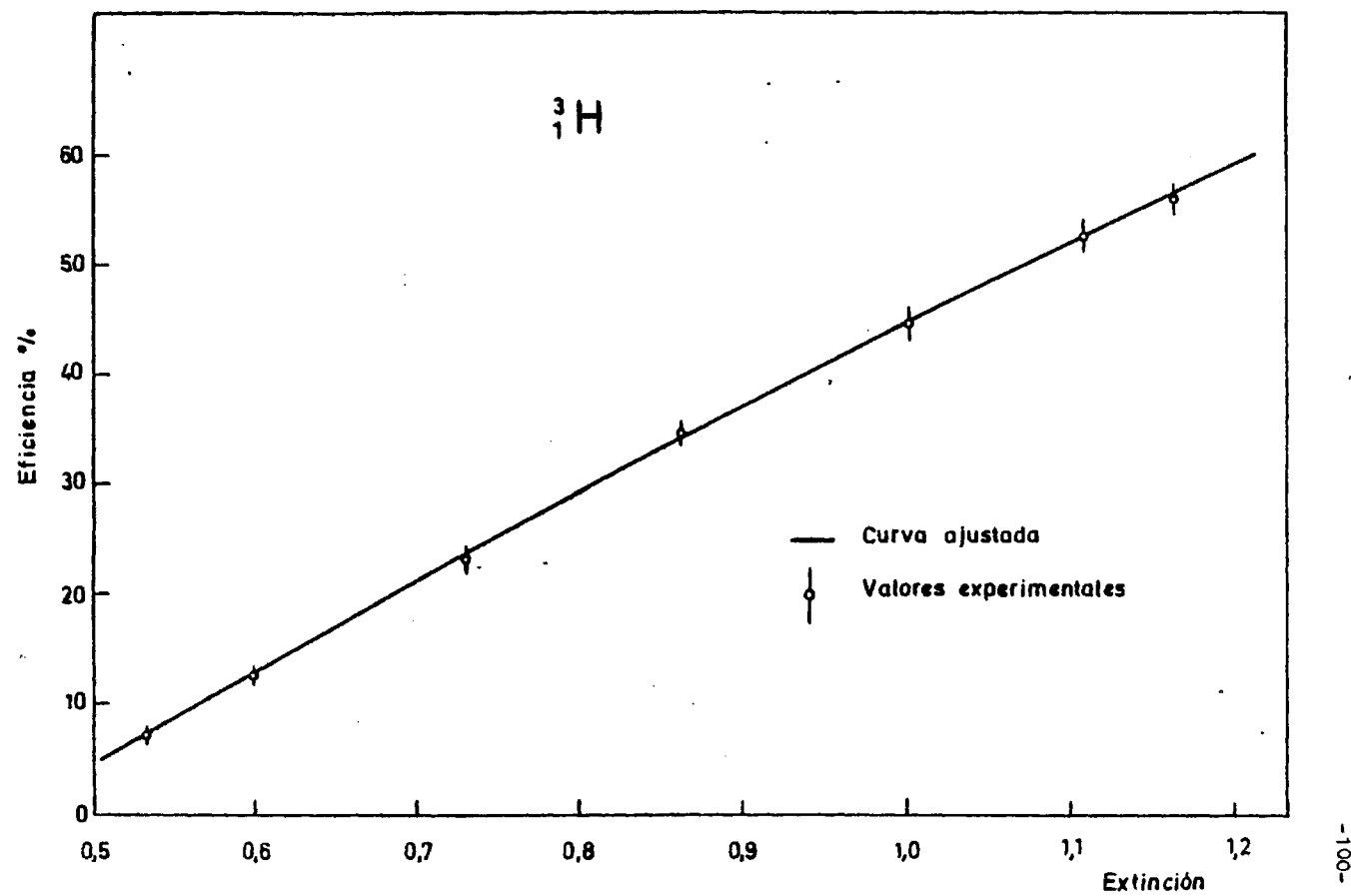


Fig. 24 - Curva de eficiencia-extinción obtenida con un espectrómetro SL-4000

wis 1970 y Rode 1974.

5.1.2 Carbono-14

Los valores experimentales de las figuras 25 y 26 se han obtenido mediante muestras selladas y preparadas por el Radiochemical Centre de Amsterdam. Los datos de las figuras 27, 28 y 29 corresponden a muestras preparadas en nuestro laboratorio empleando, como compuesto radiactivo, n-hexadecano marcado con ^{14}C . La solución, previamente calibrada por el Radiochemical Centre, se ha distribuido por pesada en los respectivos frascos. Se prepararon 30 muestras con centelleador de tolueno y 20 con cada uno de los otros dos centelleadores, dioxano e Insta-Gel. Se rechazaron tres muestras de tolueno, dos de dioxano y una de Insta-Gel; en todos los casos se trataba de muestras a las que se les había añadido demasiado tetracloruro de carbono y presentaban una extinción excesiva.

A fin de comprobar la independencia del método, respecto del equipo de medida, se ha procedido a medir las muestras selladas en tres equipos distintos. Los datos de la fig. 26 corresponden a un equipo de la firma Intertechnique, modelo SL-4000, ubicado en el Hospital Clínico de Barcelona. Los datos de las figuras 25 y 30 se obtuvieron con un espectrómetro Intertechnique, modelo SL-30, y son una clara muestra de la bondad del método seguido. La antigüedad de los tubos y el haber estado sometidos a una sobretensión -dinódica, les ha hecho perder sus características iniciales. Como la curva de calibración del ^3H presenta una pendiente elevada en el intervalo de extinciones comprendido entre 4,50 y 5,50, la curva teórica del ^{14}C muestra, en dicho intervalo, una curvatura anómala. Los dos puntos experimentales de las muestras selladas estaban de acuerdo con los valores teóricos. Para asegurar la concordancia entre los resultados teóricos y experimentales se procedió a preparar 21 muestras calibradas con extinciones comprendidas entre 3,00 y 6,60. Los puntos experimentales, así obtenidos, se han representado

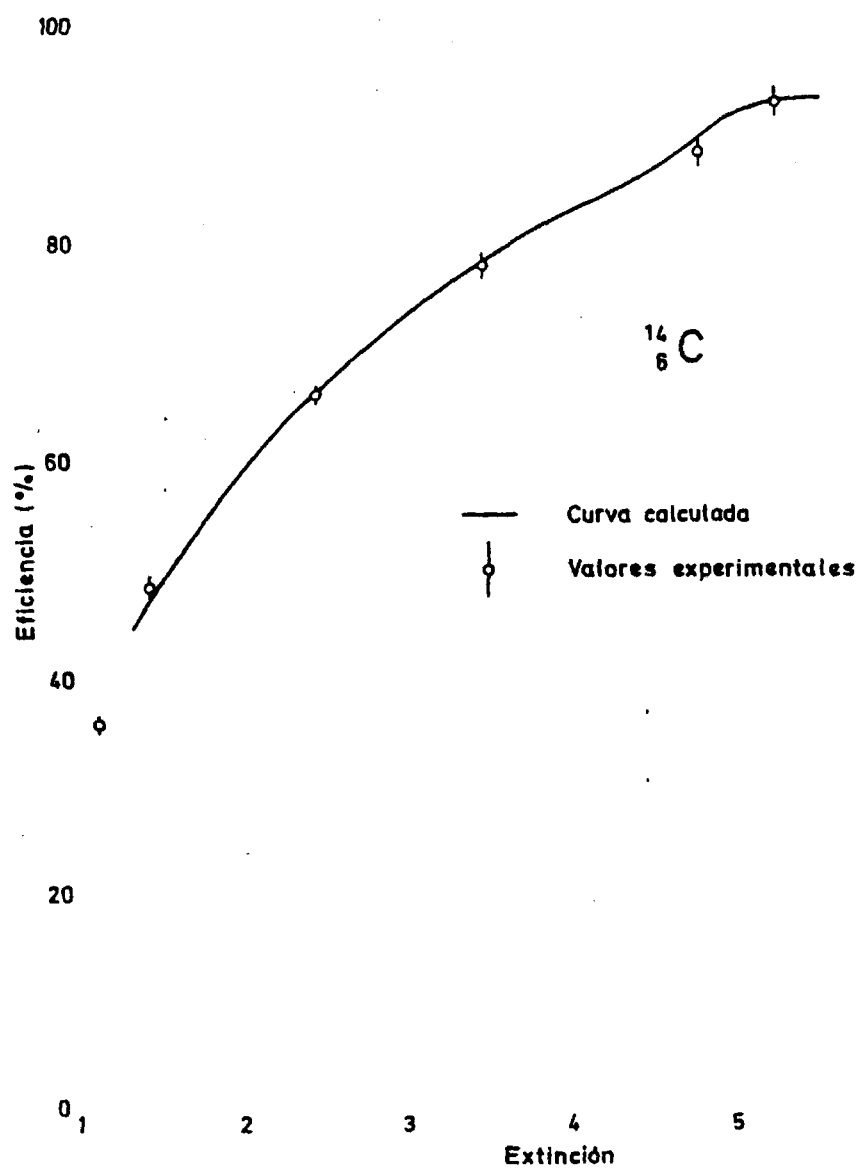


Fig. 25 - Eficiencia del ^{14}C obtenida con un espectrómetro Intertechnique modelo SL-40.

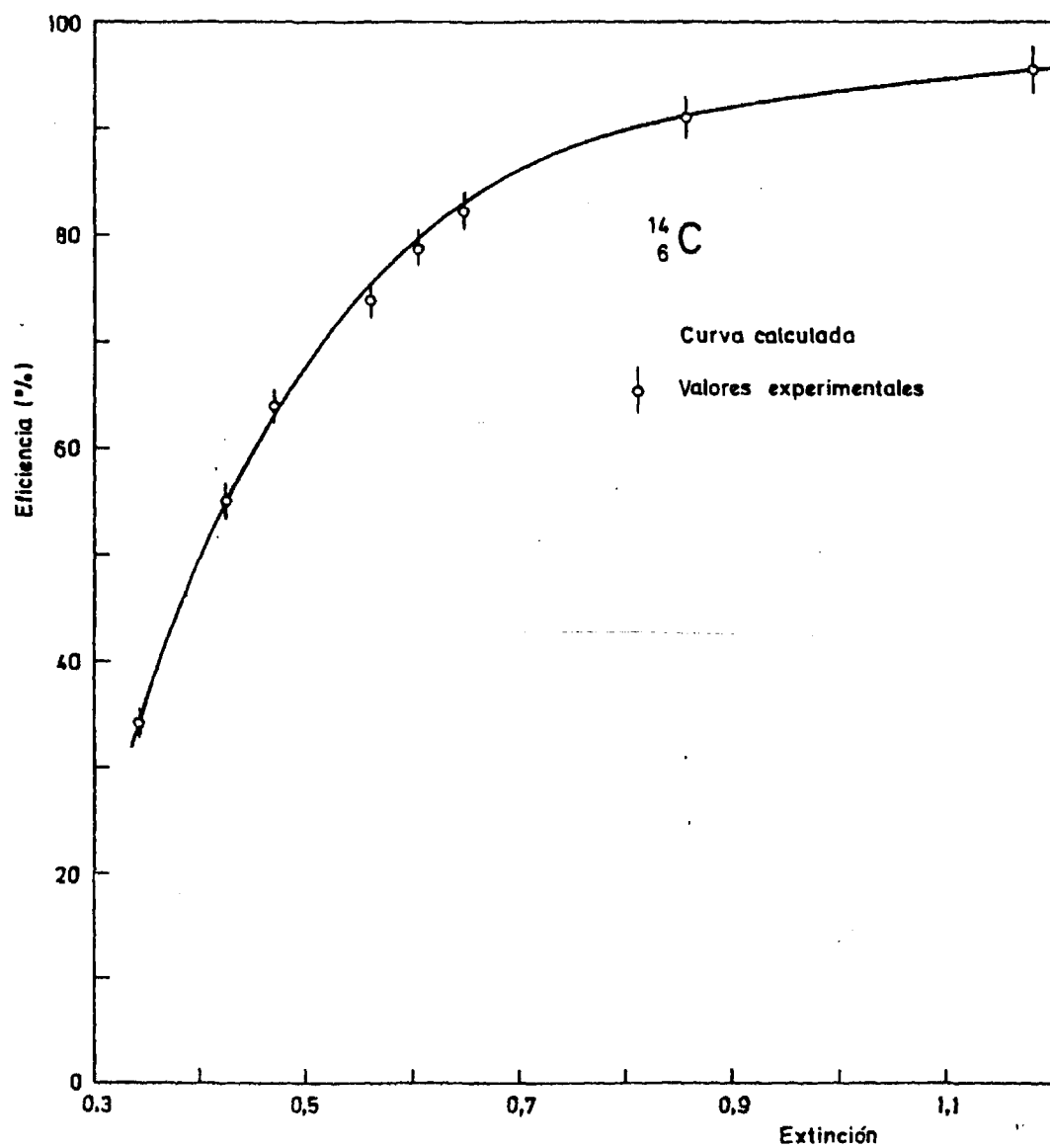


Fig. 26 - Eficiencia del ^{14}C obtenida con un espectrómetro Intertechnique modelo SI-4000.

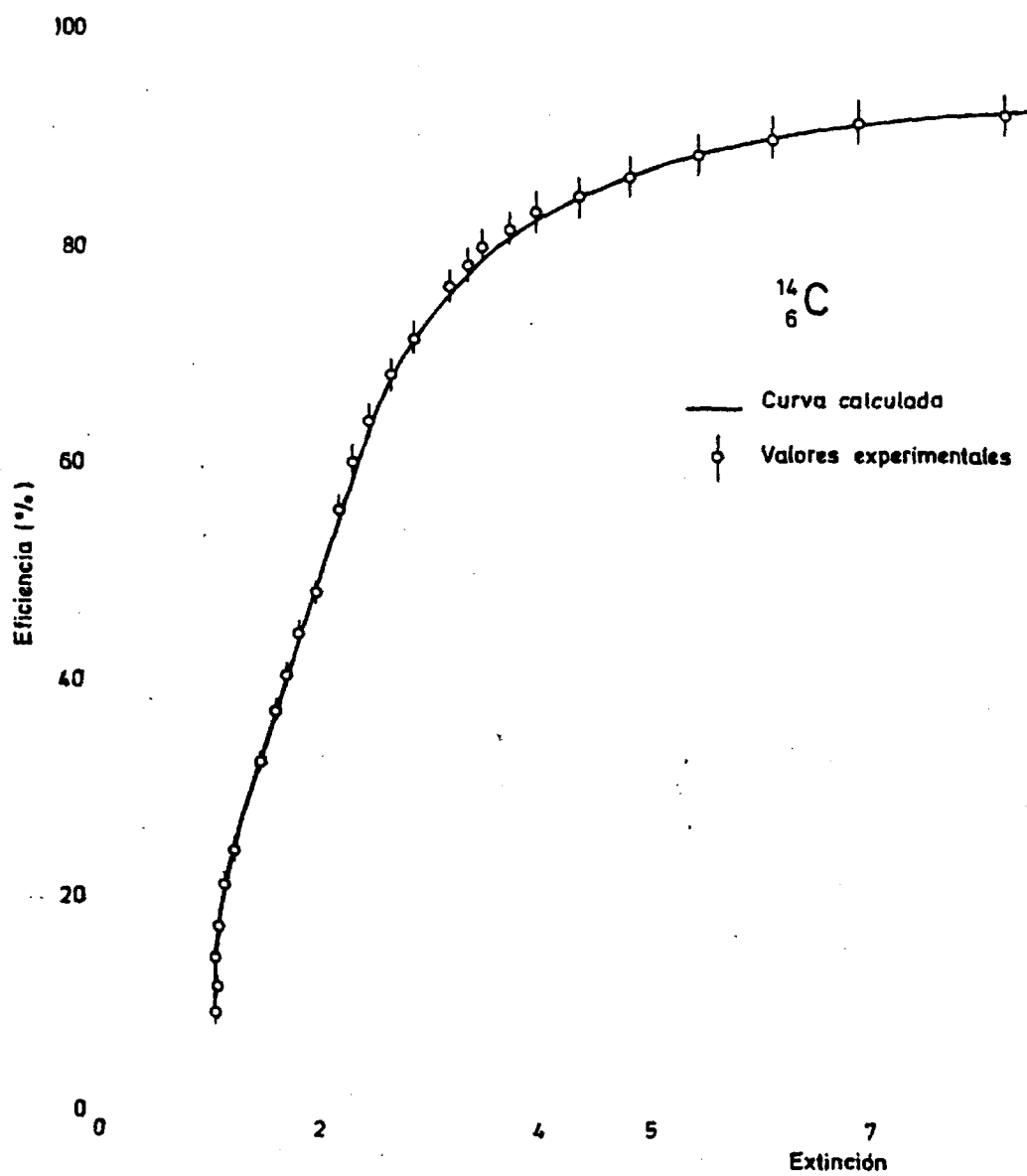


Fig. 27 - Eficiencia para el ^{14}C en centelleador de tolueno.

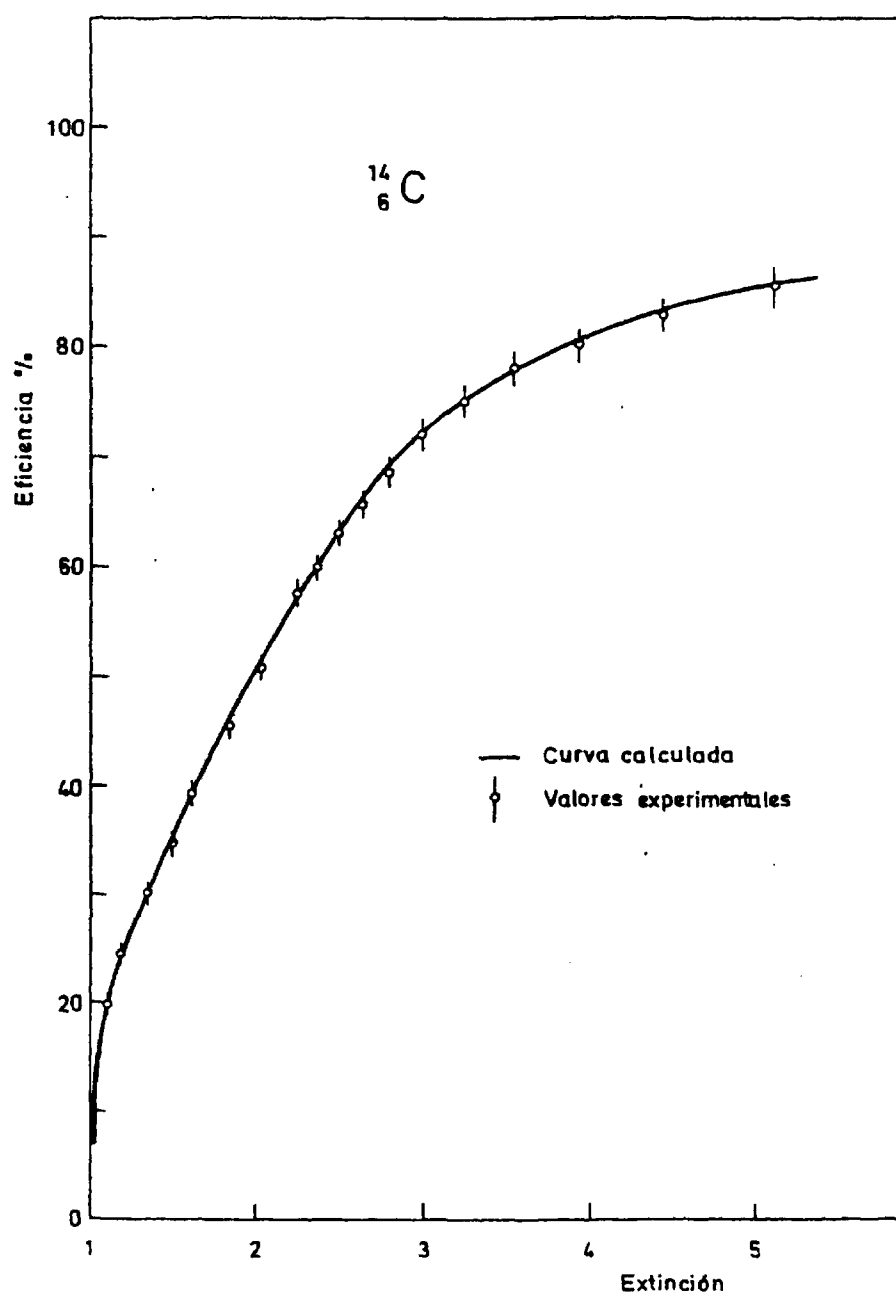


Fig. 28 - Eficiencia para el ^{14}C en centelleador de dioxano.

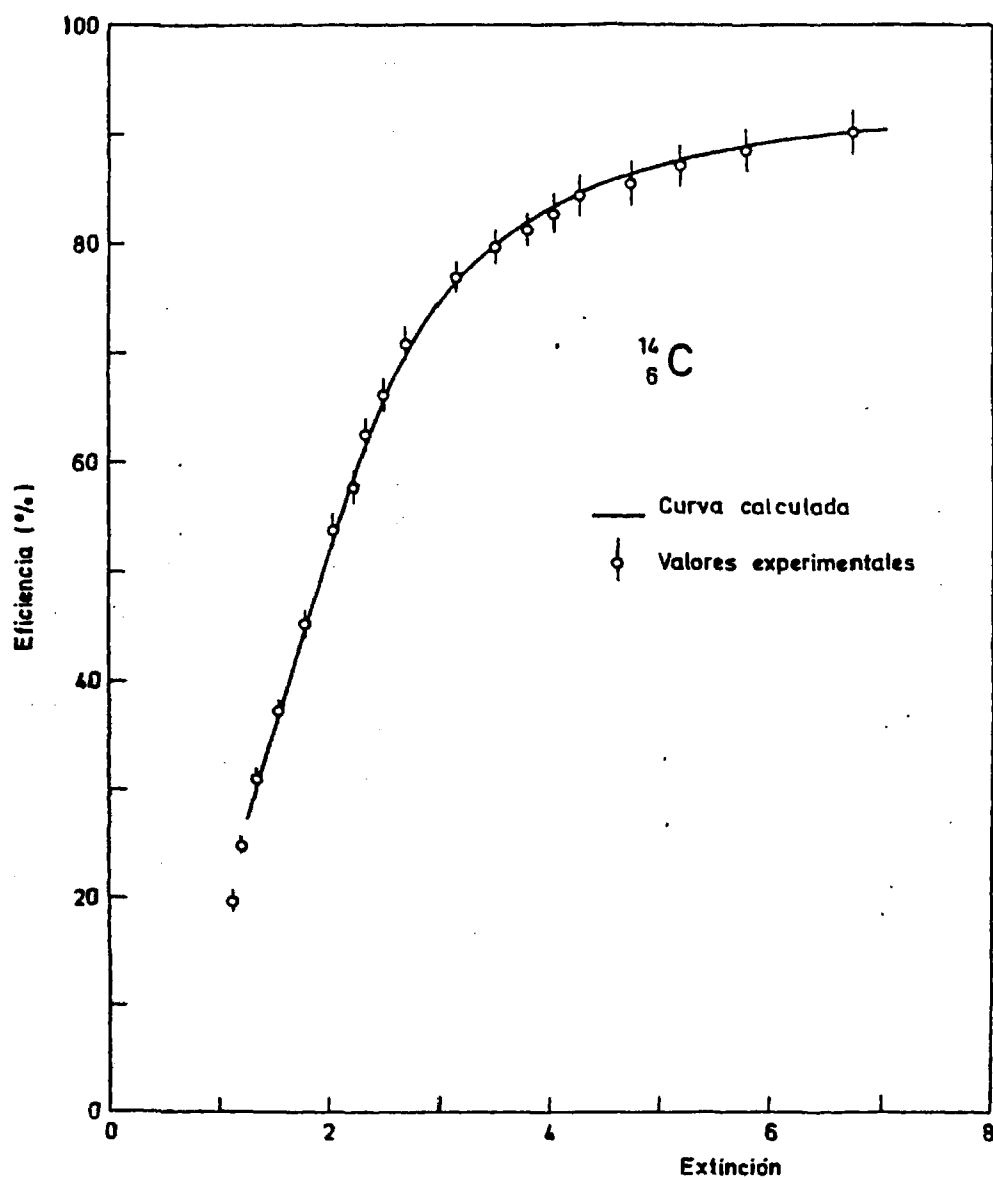


Fig. 29 - Eficiencia para el ^{14}C en centelleador de Insta-Gel.

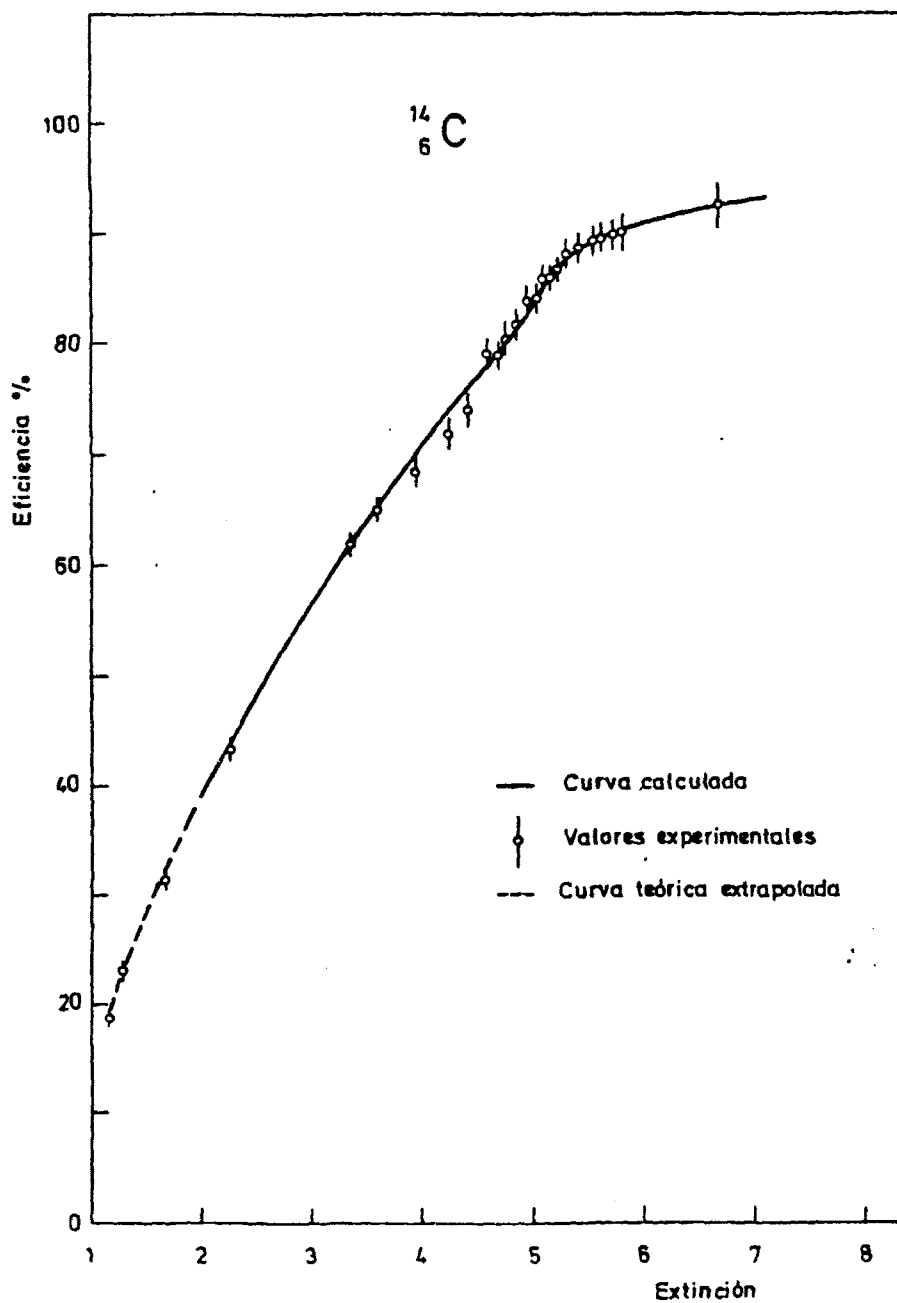


Fig. 30 - Comprobación experimental de la curvatura anómala prevista teóricamente.

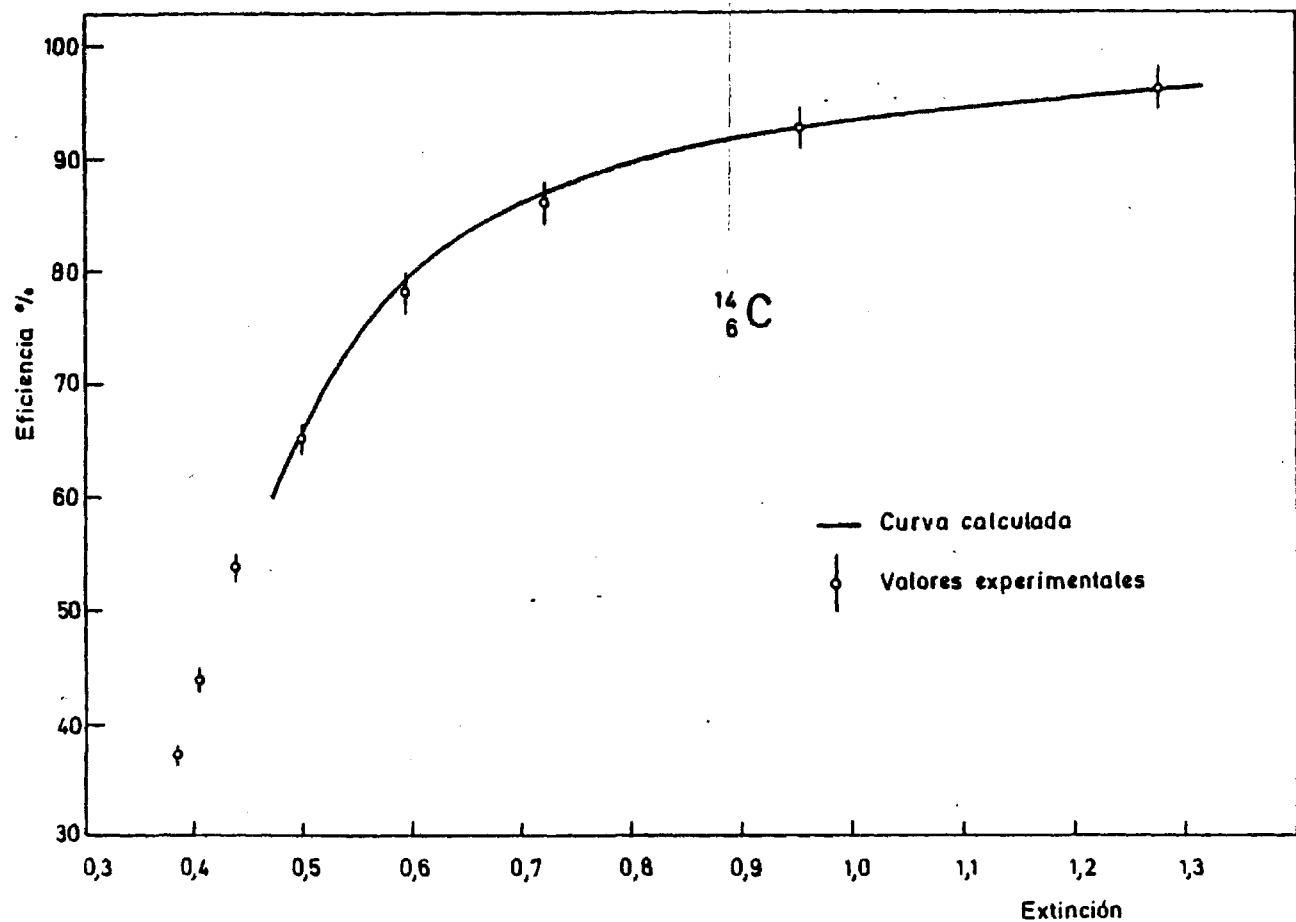


Fig. 31 - Curva de extinción para el ^{14}C en tolueno obtenida con un espectrómetro SL-4000 perteneciente al Pa. o uticos de Madrid.

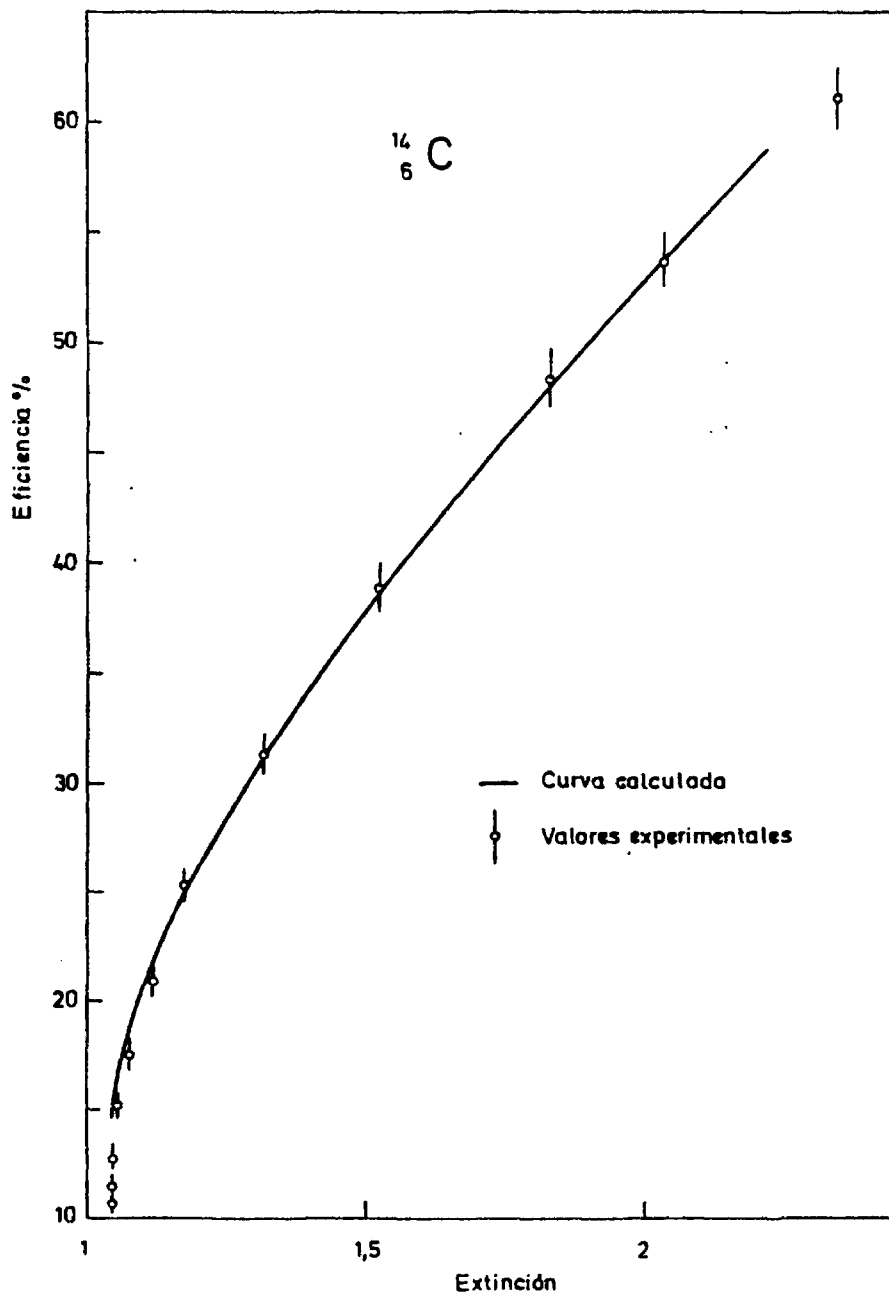


Fig. 32 - Eficiencia de detección para bajas concentraciones de PPO.

en la gráfica de la fig. 30. La curva teórica concuerda con los valores experimentales dentro de los errores de medida que son inferiores al 2%.

Los datos experimentales de la fig. 31 corresponden a un equipo Intertechnique, modelo SL-4000, del Colegio Oficial de Farmacéuticos de Madrid, y es el más moderno de los equipos ensayados.

Tanto la última gráfica de ^{14}C (fig. 32) como todas las restantes de esta memoria, se han obtenido con un espectrómetro Intertechnique, modelo SL-30, dotado de dos fotomultiplicadores RCA-4501V3, perteneciente a la Sección de Metrología de la JEN.

Los puntos experimentales de las distintas curvas tienen una incertidumbre comprendida entre el 2 y el 2,5%. El error en el parámetro de extinción, Q , es altamente variable para las distintas muestras, ya que depende de la actividad de la muestra, así como de su extinción. En el Apéndice A se ha deducido la expresión aplicada al cálculo de la desviación típica de Q .

Se ha tomado como energía máxima de este nucleido el valor 156 ± 1 keV que resulta de promediar ponderadamente los resultados debidos a Pohm y col. 1955 y a Hashizume 1966.

5.1.3 Azufre 35

En las figuras 33, 34 y 35 se han representado las eficiencias teóricas y experimentales, correspondientes al nucleido ^{35}S , en tres tipos distintos de centelleador. Como solución radiactiva se utilizó H_2SO_4 en HCl 2N que se calibró en nuestro laboratorio mediante el método de extrapolación con extinción variable (Grau y col. 1975, Horrocks 1976).

Con concentraciones radiactivas relativamente bajas: $(2,81 \pm 0,10) \cdot 10^4$ Bq/g, o sea, $0,759 \pm 0,027$ $\mu\text{Ci/g}$, se prepararon 14 muestras con centellea-

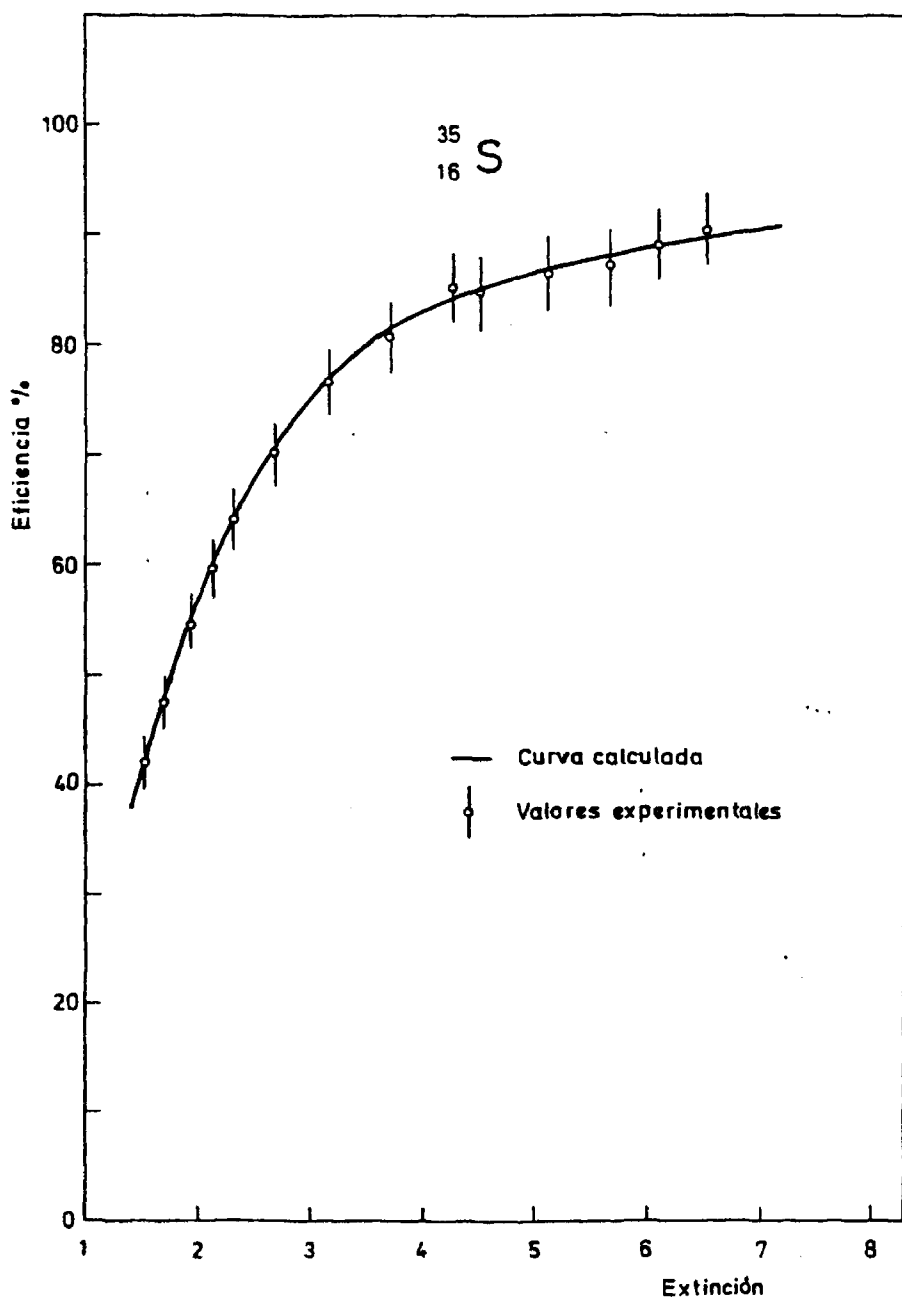


Fig. 33 - Eficiencia para el ^{35}S en centelleador de tolueno.



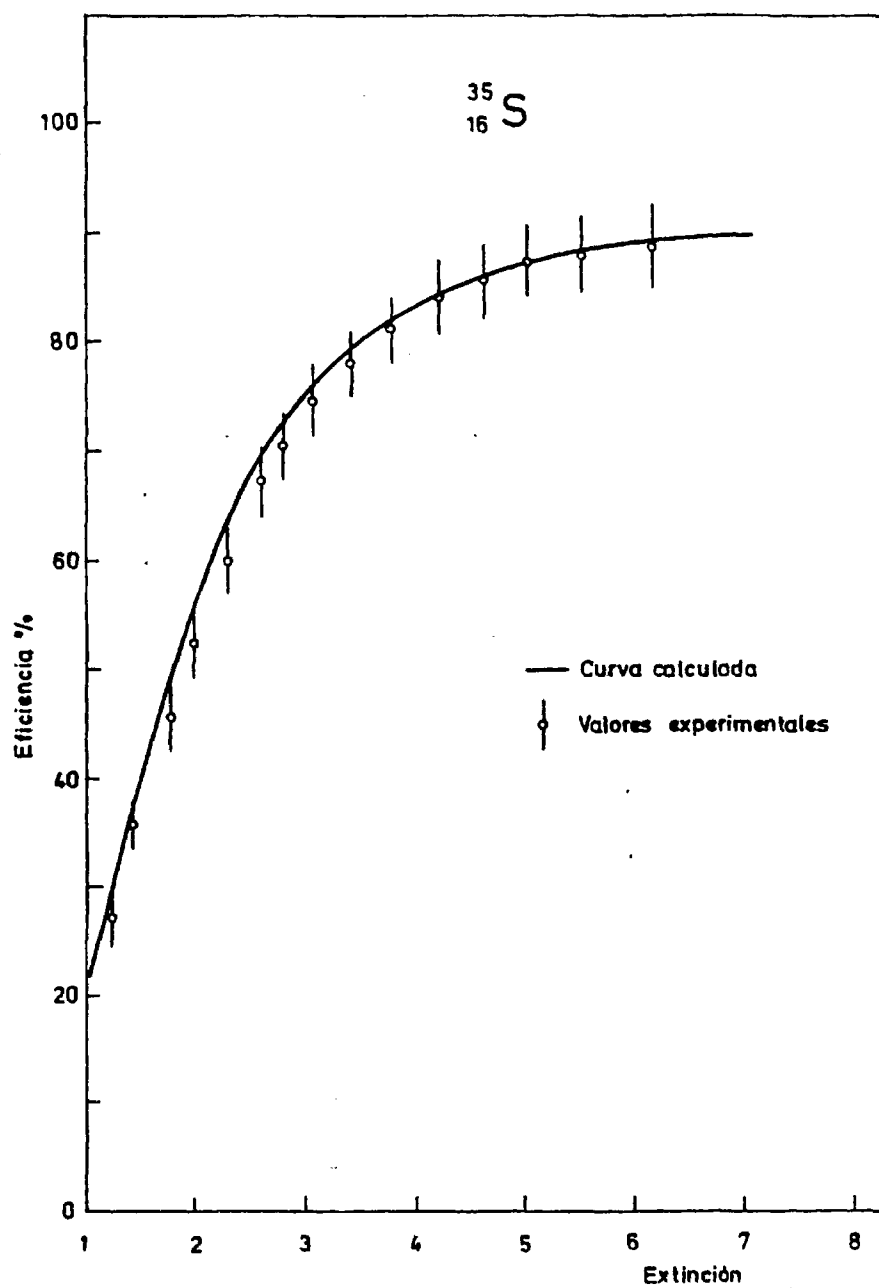


Fig. 34 - Eficiencia para el ^{35}S en centelleador de Insta-Gel.

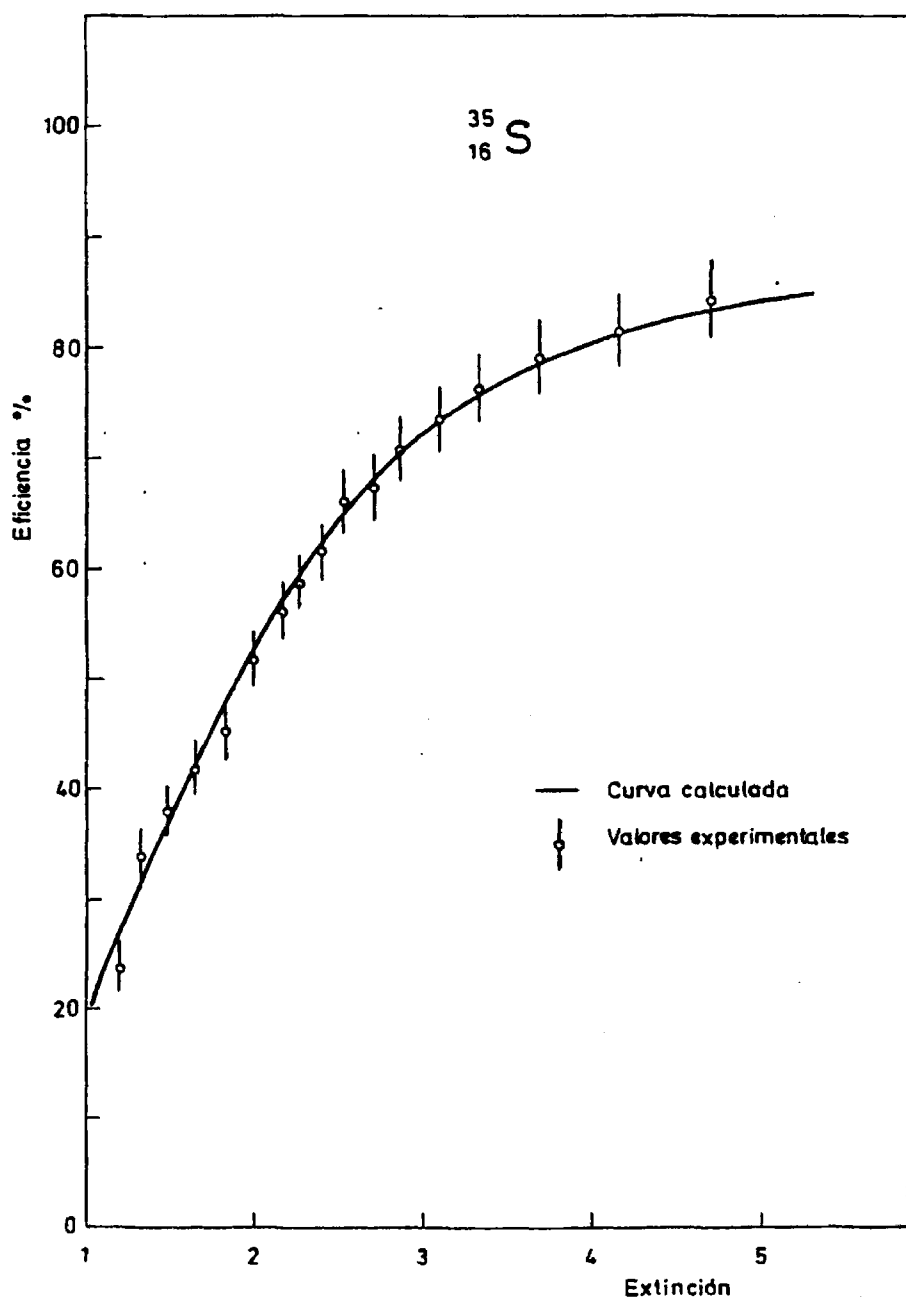


Fig. 35 - Eficiencia para el ^{35}S en centelleador de dióxano...

dor de tolueno-alcohol mediante la adición de pesos de solución radiactiva del orden de 100 mg; 17 muestras con centelleador de dioxano y pesos de solución del orden de 150 mg; y, por último, 15 muestras con centelleador de Insta-Gel y pesos de solución del orden de 100 mg.

Con todas las muestras se comprobó primero que la quimioluminiscencia, si existía, no era detectable, y después se procedió a incorporar cantidades distintas de tetracloruro a cada una de las muestras, para forzar la extinción.

Las incertidumbres de los puntos experimentales corresponden a valores comprendidos entre el 4,5 y el 8 por ciento, en el caso de la eficiencia.

Para el cálculo de las curvas teóricas se ha adoptado como energía máxima del espectro beta el valor $167,4 \pm 0,6$ keV, que resulta de promediar ponderadamente los valores obtenidos por Langer y col. 1950, Snyder y col. 1966, Connor y col. 1957 y Martin 1976.

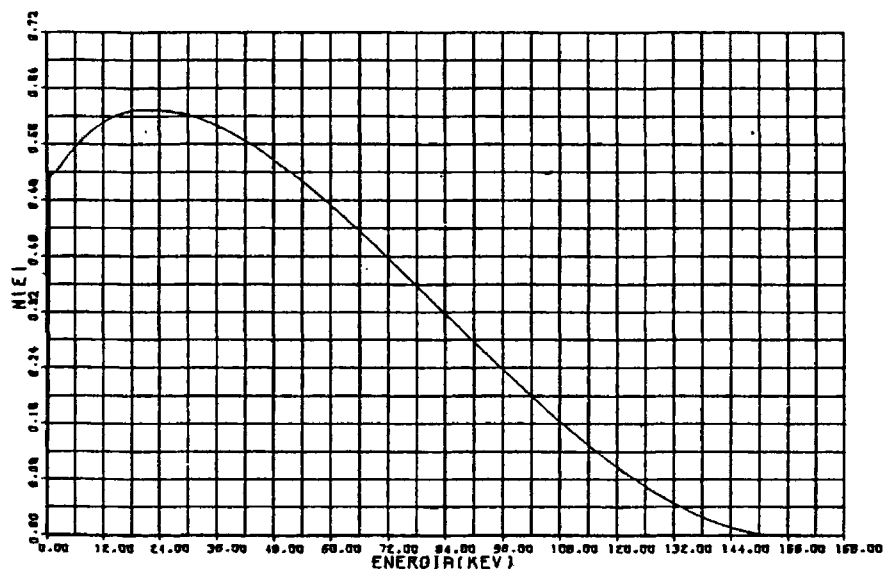
La transición $\frac{3^+}{2} \rightarrow \frac{3^+}{2}$, con un $\log ft = 5$, se ha tomado como permitida. Las incertidumbres en la energía, en el factor kB y en la curva experimental del 3H , conducen a una incertidumbre total inferior al 4,5% en el caso de máxima extinción.

En las figuras 36 y 37 se han representado los espectros beta del ^{14}C y del ^{35}S . Como puede apreciarse por simple inspección, las formas de los espectros son muy distintas, lo que parece indicar que las eficiencias, para una extinción dada, también deberían serlo. Sin embargo, comparando las curvas de eficiencia del ^{14}C (figs. 27, 28 y 29) con las del ^{35}S (figs. 33, 34 y 35), se puede concluir que las discrepancias son inferiores al ocho por ciento en un amplio intervalo de extinciones; esto significa que se puede emplear como patrón, en una medida de rutina de ^{35}S , una solución de ^{14}C que siempre es más fácil de encontrar en el mercado.

Es interesante señalar que en la curva de calibración con centelleador

PERIODO : 5730 A

NUCLEIDO : C-14



E.MAX=156.1

<E>=49.3

E.MEDIA=44.5

Fig. 36 - Espectro beta del ^{14}C .

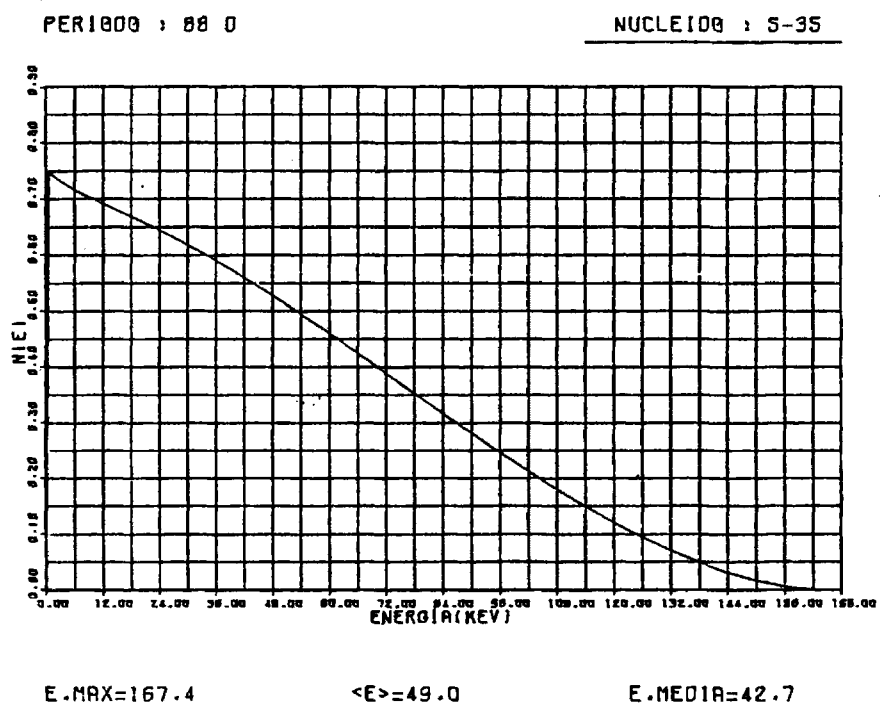


Fig. 37 - Espectro beta del ^{35}S .

de Insta-Gel se observa, para extinciones comprendidas entre $Q = 1$ y $Q = 3$, que los puntos experimentales están situados sistemáticamente por debajo de la curva teórica. Como se demostrará, esto es generalmente una indicación - de que las muestras presentan cristalización o precipitación. Los distintos ensayos encaminados a conseguir una buena disolución han resultado infructuosos. No se han ensayado otras sales; en primer lugar, porque no se disponía de suficiente actividad para realizar manipulaciones químicas dirigidas a obtener soluciones radiactivas compatibles con el centelleador; y, además, porque los puntos experimentales de las curvas con centelleador de dioxano y con centelleador de tolueno no manifestaban la citada anomalía, al menos dentro de los errores experimentales.

Del acuerdo entre los resultados experimentales y los teóricos, se puede concluir que el método de cálculo permite obtener la eficiencia de detección con incertidumbres inferiores al 4,5%, para eficiencias comprendidas - entre el 90 y el 70%. En el caso de eficiencias mucho más bajas, la incertidumbre puede alcanzar hasta el 8%.

5.1.4 Tecnecio 99

El ^{99}Tc se puede considerar como un emisor beta "puro", ya que la transición al nivel de 90 keV del ^{99}Ru tiene una intensidad de $1,6 \times 10^{-5}\%$, totalmente despreciable para nuestro estudio.

Para obtener los resultados experimentales representados en las figuras 38, 39 y 40 se partió de una solución calibrada de pertechnetato amónico - en NH_4OH 0,1 normal. La concentración de actividad -según Amersham- era de $20,30 \pm 0,50 \mu\text{Ci/g}$, o sea, $(0,751 \pm 0,019) \times 10^6 \text{ Bq/g}$. Una dilución con NH_4OH 0,1 N permitió obtener una solución con una concentración de actividad de $0,492 \pm 0,015 \mu\text{Ci/g}$, es decir, $(1,82 \pm 0,06) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

Se prepararon quince muestras con centelleador de tolueno; previamente

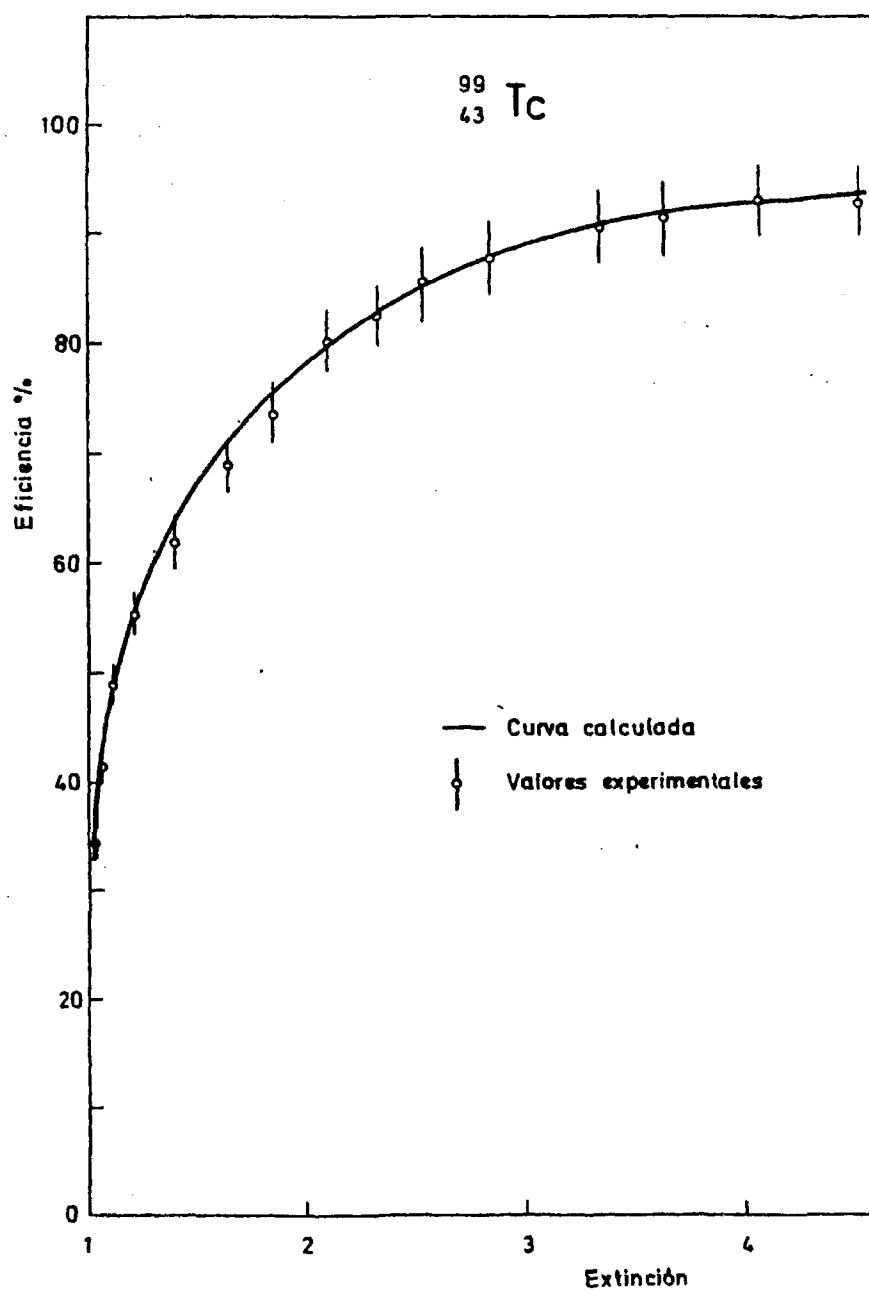


Fig. 38 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

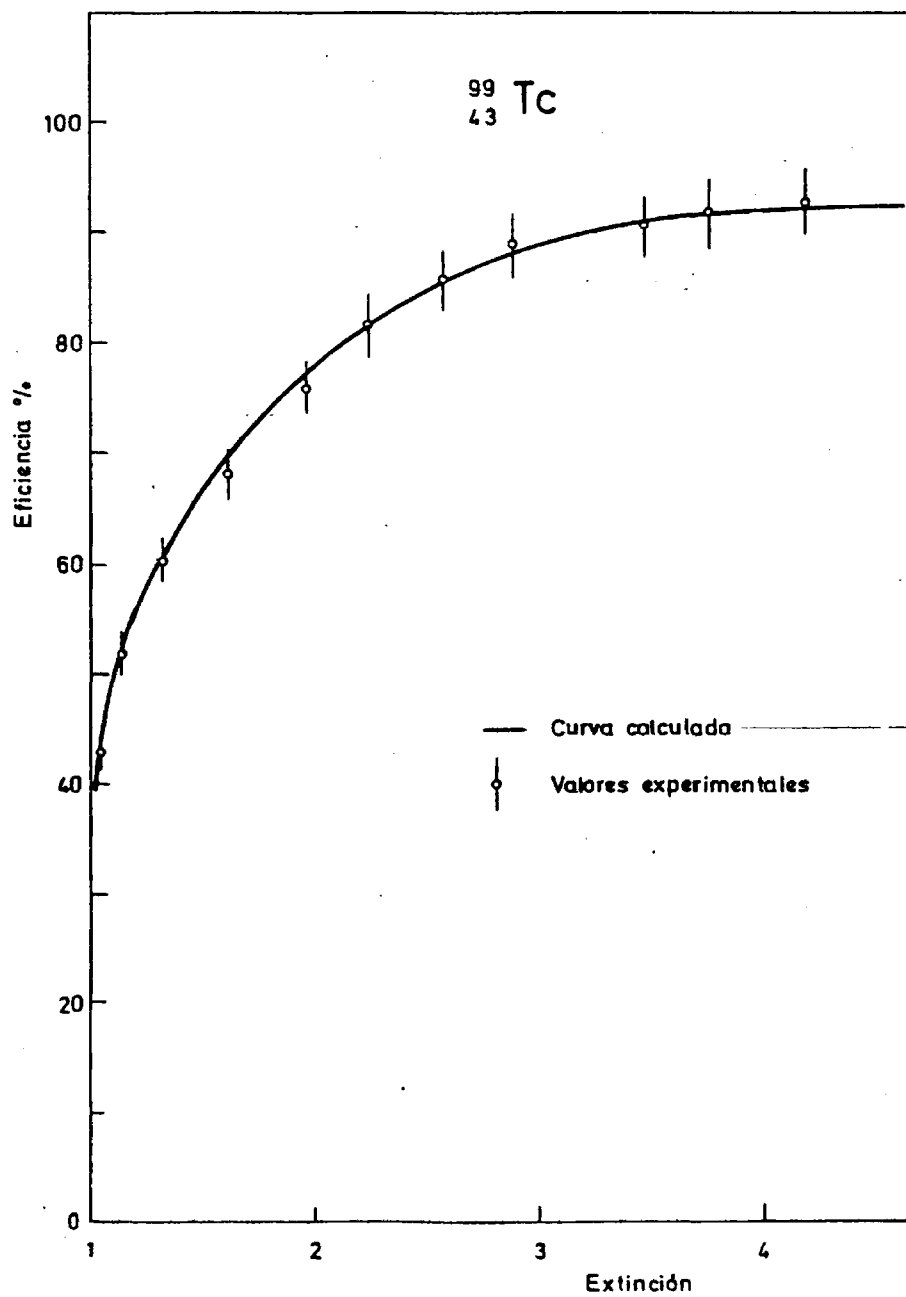


Fig. 39 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

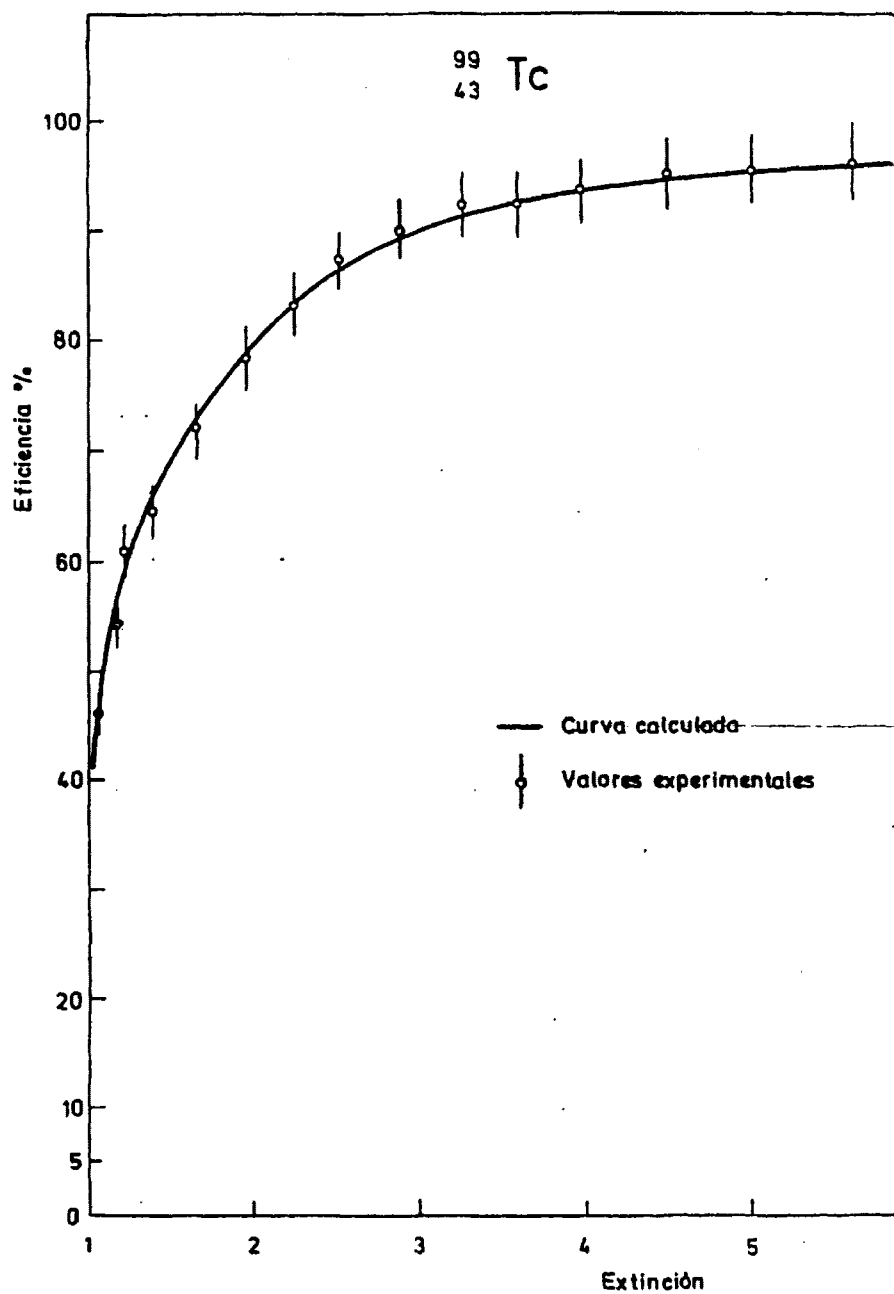


Fig. 40 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

a cada frasco se le había añadido un 13% de etanol absoluto y del orden de 100 mg de solución radiactiva diluida. Las once muestras con centelleador - de dioxano se obtuvieron adicionando directamente al centelleador del orden de 120 mg de solución radiactiva. Las quince con centelleador de Insta-Gel se prepararon agregando directamente al centelleador del orden de 100 mg de solución radiactiva. Para producir la extinción, en todos los casos, se aña dieron cantidades variables entre cero y 200 mg de tetracloruro de carbono.

En todas las muestras, antes de incorporarles el extintor, se comprobó la ausencia de quimioluminiscencia.

En el cálculo teórico de la eficiencia se adoptó como energía máxima - 293 ± 2 keV, que resulta de promediar ponderadamente los valores obtenidos por Engelke y col. 1974, Feldman y col. 1952, Reich y col. 1974, Snyder y - col. 1966 y Taimuti 1955.

La transición $\frac{9}{2}^+ \rightarrow \frac{5}{2}^+$, con un $\log ft = 12,3$, es prohibida de segundo - orden y según Feldman y col. 1952, el factor de corrección C en la fórmula (3.2.1) ha de tomarse igual a $p^2 + (2,0 \pm 0,5) q^2$.

Para comprobar el ajuste entre las curvas teóricas y los valores experimentales, se señalará que las incertidumbres de los puntos experimentales varían entre el 3,5 y el 4%, mientras que la cota de error atribuible a los resultados teóricos oscila entre el 2,2 y el 4% (la incertidumbre máxima co rresponde a muestras fuertemente extinguidas, $Q = 1,2$).

La concordancia entre los valores teóricos y experimentales es extraordinariamente buena, lo que parece indicar que las incertidumbres se han so breestimado.

5.1.5 Wolframio 185

Los datos experimentales representados en las figuras 41, 42 y 43 son el resultado de la medida de tres juegos de muestras preparadas en nuestro laboratorio. El compuesto radiactivo era una solución de Na_2WO_4 en NaOH 0,1N calibrada por el Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants (L.M. R.I.) de Saclay (Francia). La solución radiactiva se ha incorporado al líquido centelleador por pesada. Como la concentración radiactiva de la solución era demasiado elevada $((7,55 \pm 0,19) \times 10^5 \text{ Bq.g}^{-1})$, o sea, $20,4 \pm 0,5 \mu\text{Ci.g}^{-1}$, se procedió previamente a una dilución, de forma que la concentración radiactiva final resultó ser $(2,64 \pm 0,08) \cdot 10^4 \text{ Bq.g}^{-1}$, o sea, $0,714 \pm 0,02 \mu\text{Ci.g}^{-1}$.

Se prepararon siete muestras con centelleador de tolueno, al que, con anterioridad, se le había adicionado un trece por ciento en volumen de etanol; en estas condiciones, y para los pesos de la solución radiactiva (del orden de 50 mg), el agua puede incorporarse al centelleador. Con el centelleador de dioxano se prepararon diez muestras; los pesos, en este caso, fueron del orden de 80 mg y la solución radiactiva se incorporó directamente al centelleador. Las pruebas destinadas a comprobar la existencia de quimiluminiscencia dieron resultados negativos. La preparación de las muestras con centelleador de Insta-Gel se efectuó añadiendo del orden de 60 mg de solución radiactiva a cada uno de los frascos que contenían la solución centelleadora. Para conseguir la extinción deseada se recurrió, en todos los casos, a la adición -volumétrica- de la cantidad adecuada de tetracloruro de carbono.

Los valores de las incertidumbres en la eficiencia varían entre el 3 y el 3,5%. Aunque el período de semidesintegración de este nucleido es relativamente corto, de $75,1 \pm 0,3$ días, (Emery y col. 1972) la contribución del error del período a la incertidumbre de la eficiencia, resultó inferior al uno por mil en cualquiera de las medidas. Las incertidumbres del parámetro de extinción, Q , no se han representado en las figuras ya que, en el peor de los casos, son inferiores al 1%.

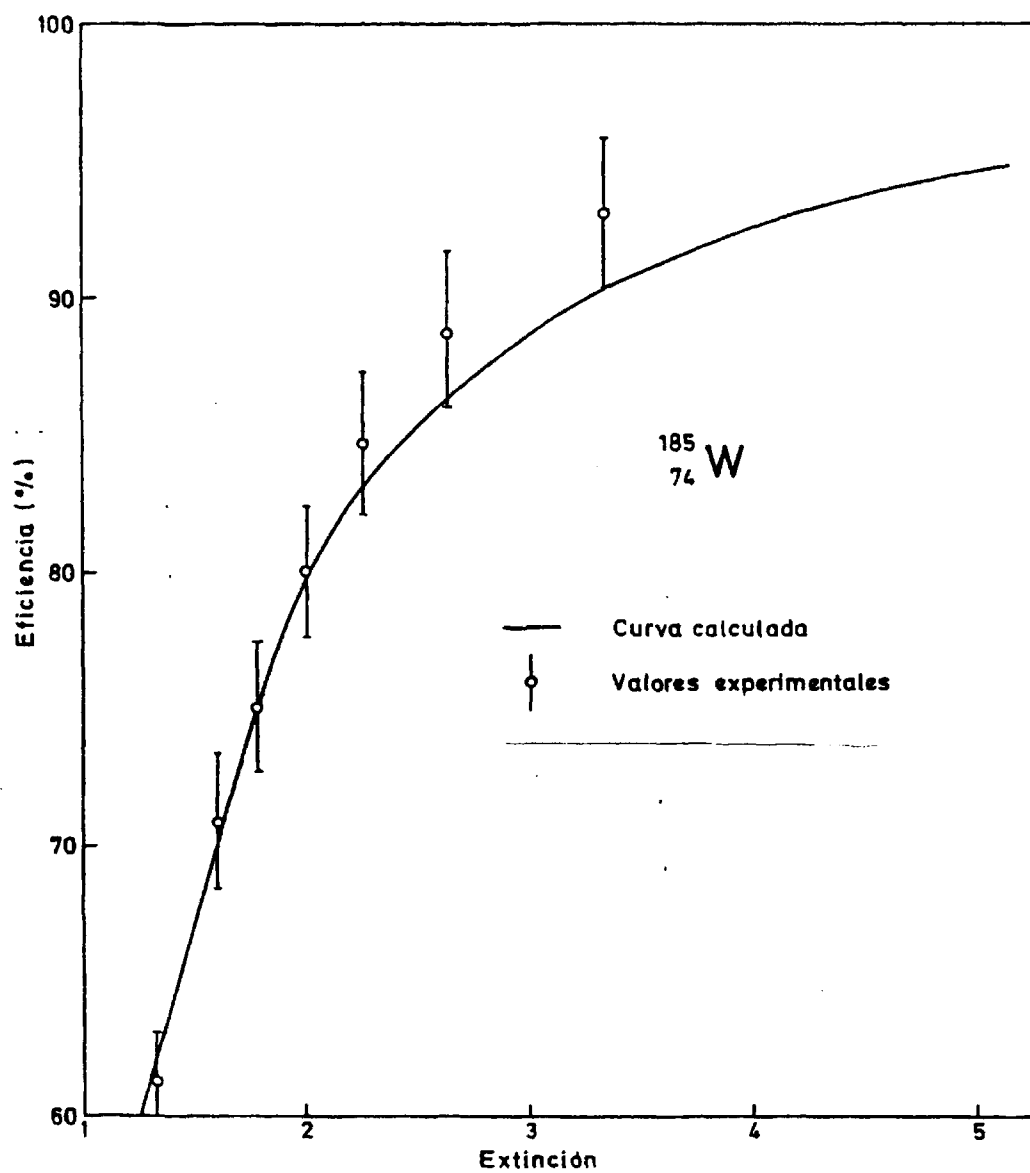


Fig. 41 - Eficiencia para el ^{185}W en centelleador de tolueno.

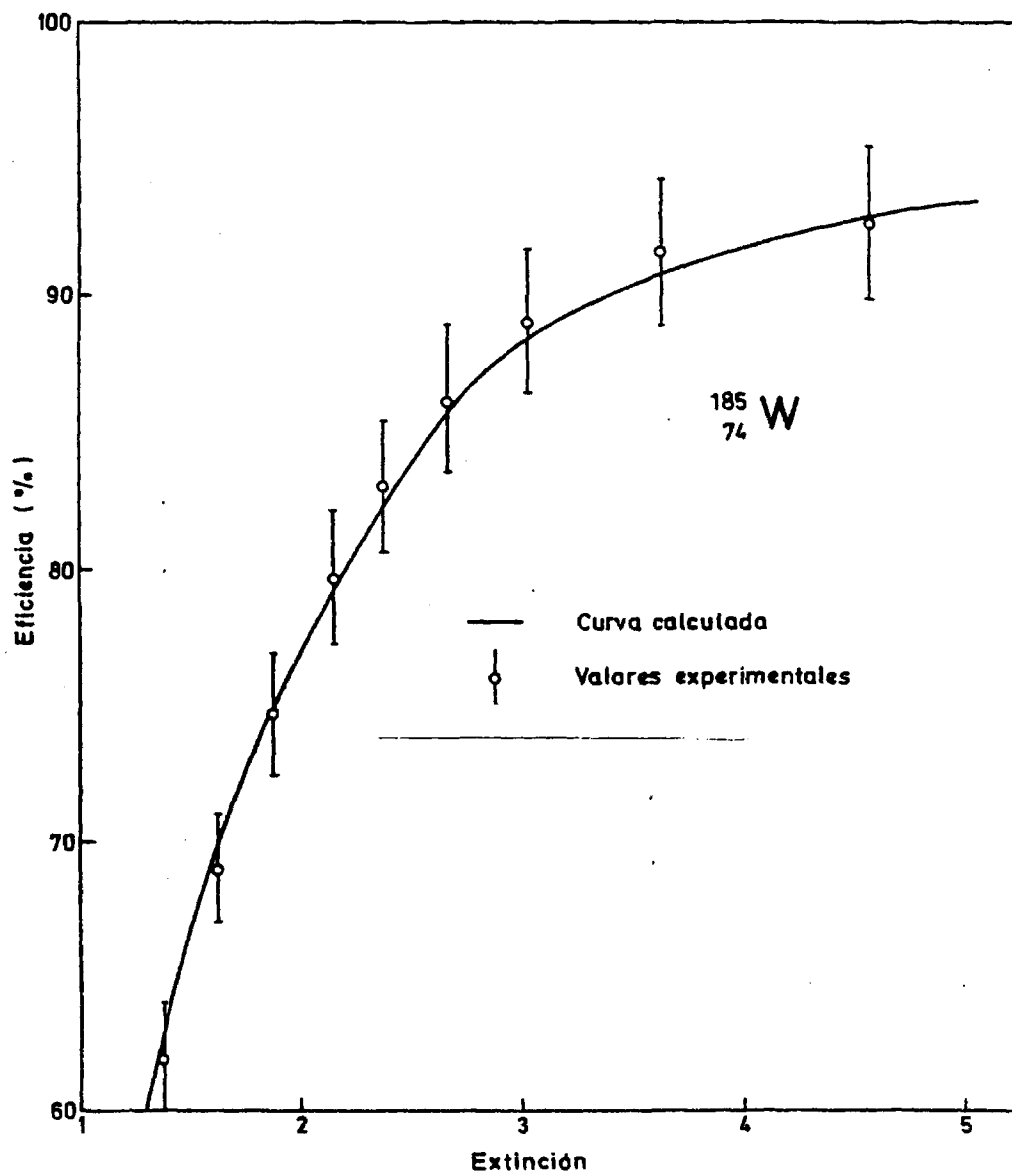


Fig. 42 - Eficiencia para el ^{185}W en centelleador de dioxano.

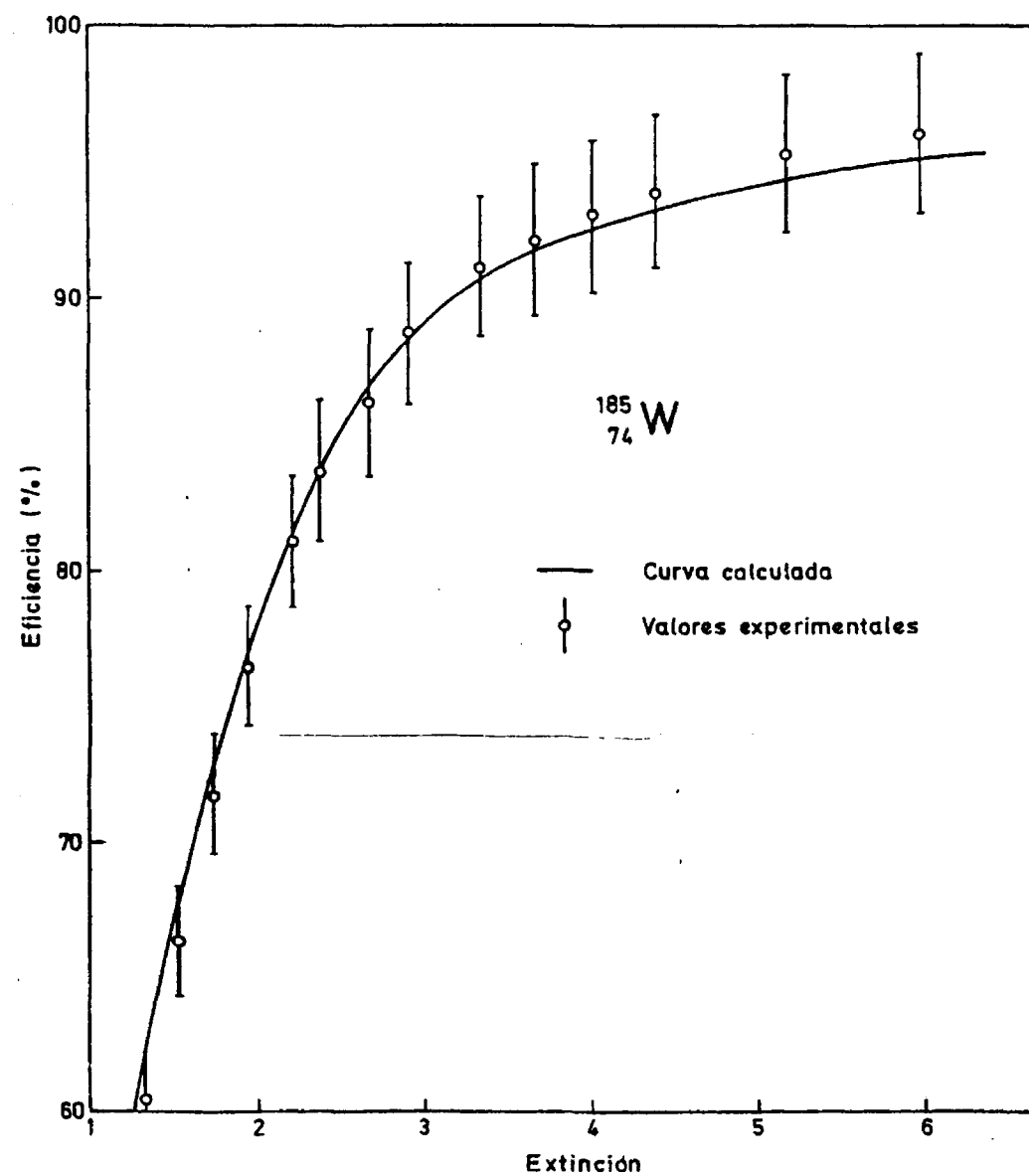


Fig. 43 - Eficiencia para el ^{185}W en centelleador de Insta-Gel.

El cálculo de la eficiencia teórica se ha realizado mediante el programa BETA. Como energía máxima del espectro de negatones se ha adoptado el valor 432 ± 1 keV, que resulta de promediar mediante pesos los valores publicados por Armitage y col. 1958, Sexon 1948 y Willett y col. 1967. La transición $\frac{3}{2}^- \rightarrow \frac{5}{2}^+$ con un $\log ft = 7,5$ es una vez prohibida; pero, según el trabajo experimental de Spejewski 1966, la forma del espectro beta es puramente estadística y el coeficiente de Fierz nulo.

Las incertidumbres en los resultados teóricos son difíciles de cuantificar con precisión, pero es posible obtener una cota de error. Si en la corrección por autoionización se toma $kB = 9 \text{ mg cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1}$, para los centelleadores empleados, es de prever una incertidumbre máxima del 10% en dicha constante, lo que se traduce en un 3% de incertidumbre en el valor de $I(E)$ y algo menos en la eficiencia calculada. Por otra parte, la indeterminación en la energía introduce una incertidumbre del 0,4% para extinciones elevadas.

Así pues, resulta correcto admitir que la incertidumbre máxima de la eficiencia será del orden del 4%.

A la vista de las anteriores incertidumbres y de los resultados presentados en las gráficas de las figuras 41, 42 y 43, se puede concluir que existe buena concordancia entre los valores teóricos y los experimentales y, por consiguiente, que para el nucleido y la energía beta considerada es correcto el método de cálculo de las eficiencias, admitiendo una incertidumbre del 4%.

5.1.6 Cloro 36

El ^{36}Cl no es en rigor un nucleido emisor beta "puro", ya que en el 98,1% de los casos se desintegra por emisión beta negativa, y en el 1,9% de los casos restantes, por captura electrónica. El cálculo riguroso de la eficiencia demuestra, sin embargo, que si se considera sólo la emisión beta, -

con una intensidad del 100% y no se tiene en cuenta la captura electrónica, el error que se comete es inferior al uno por ciento.

Para preparar las muestras se partió de una solución radiactiva de cloruro sódico, marcado con ^{36}Cl , cuya composición química era 15 mg de NaCl - por gramo de H_2O . Esta solución patrón había sido calibrada por el L.M.R.I. de Francia.

Por ser excesiva la concentración radiactiva ($22,70 \pm 0,34 \mu\text{Ci/g}$, equivalentes a $(8,40 \pm 0,13) \times 10^5 \text{ Bq/g}$), se procedió a una dilución con agua, que dió como resultado una concentración radiactiva de $0,642 \pm 0,013 \text{ Ci/g}$, es decir, $(2,38 \pm 0,05) \cdot 10^4 \text{ Bq/g}$.

Se prepararon diez muestras con centelleador de tolueno; previamente, a cada frasco se le había añadido un 13% de etanol absoluto y del orden de 50 mg de solución radiactiva. Con el centelleador de dioxano se prepararon dieciocho muestras, a las que se les adicionó del orden de 80 mg de solución. Por último, con el centelleador de Insta-Gel se prepararon once muestras, a las que se les incorporó cantidades de solución radiactiva del mismo orden que a las muestras de tolueno.

Las incertidumbres de los puntos experimentales corresponden a valores comprendidos entre el 2 y el 2,5%. Los puntos experimentales del centelleador de dioxano parecen estar sistemáticamente por debajo de la curva teórica, lo cual podría indicar la existencia de microcristalizaciones; sin embargo, nada se puede afirmar a este respecto, ya que los valores experimentales son compatibles con los teóricos.

La energía beta máxima, adoptada para el cálculo teórico de las curvas de eficiencia, corresponde al valor medio ponderado de los resultados publicados por Spejewski y col. 1967, Pierson 1967, Reich y col. 1974, Feldman y col. 1952 y Johnson y col. 1956. El resultado es $709,7 \pm 1,5 \text{ keV}$; la incertidumbre se ha tomado igual a tres veces la desviación típica.

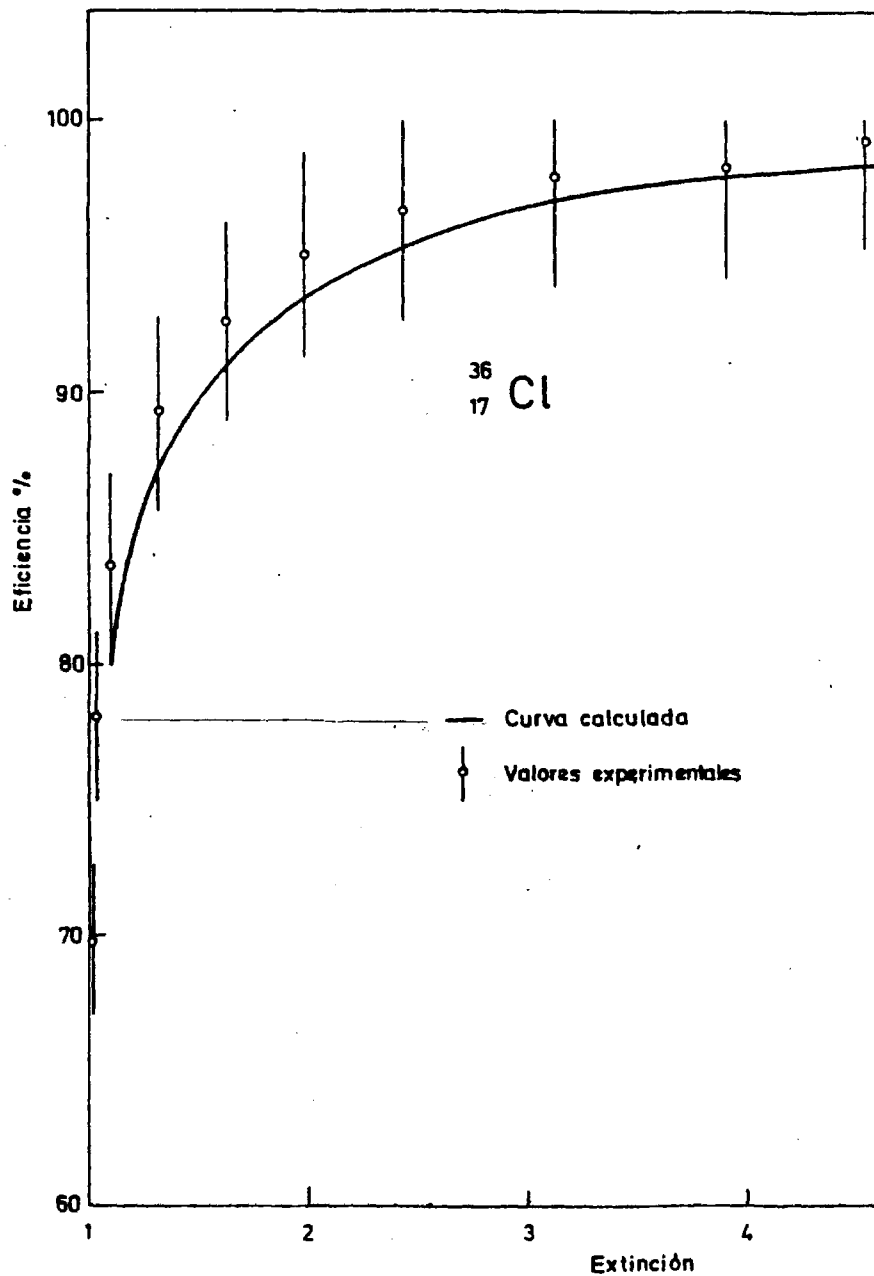


Fig. 44 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

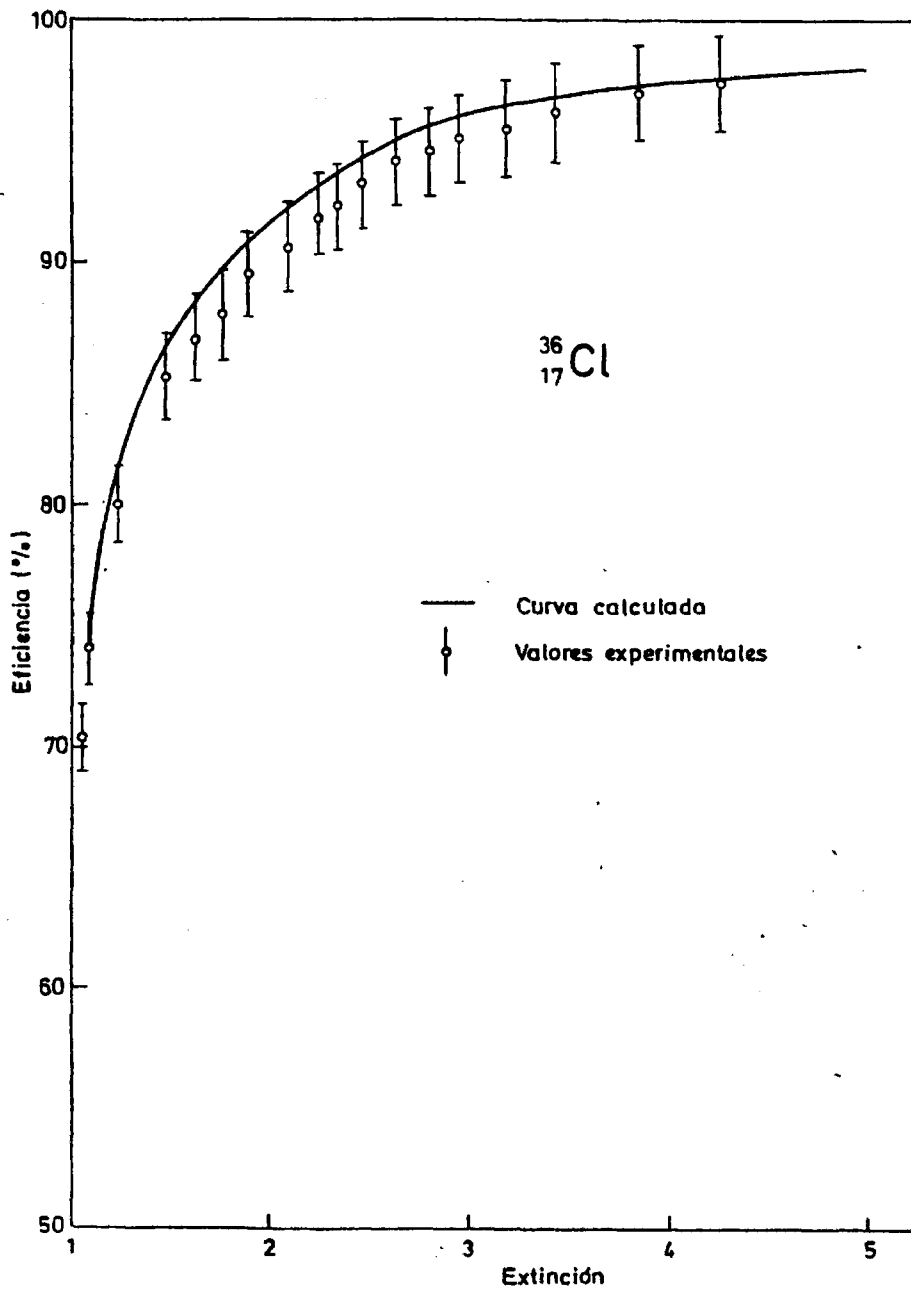


Fig. 45 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

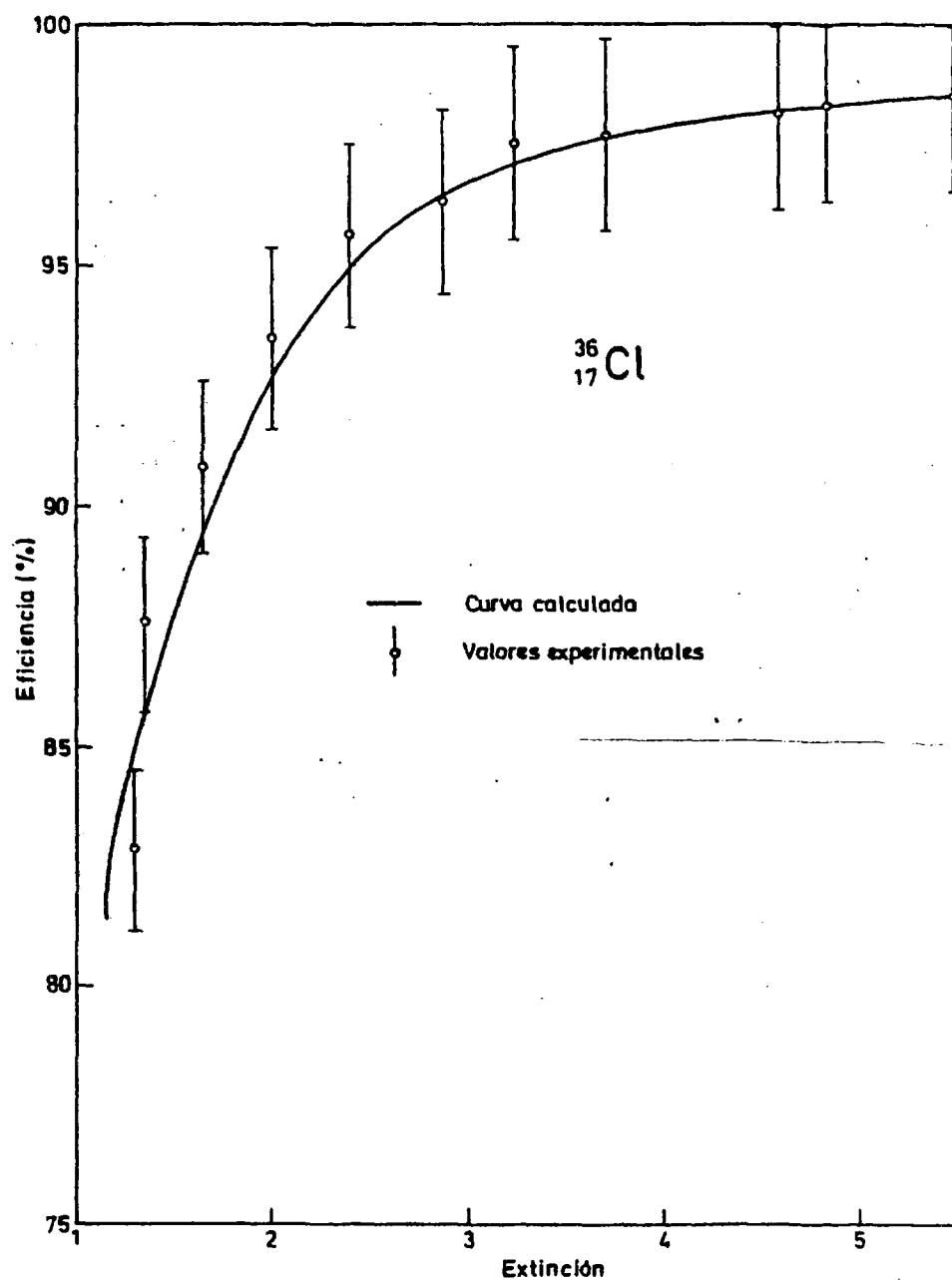


Fig. 46 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

La transición $2^+ \rightarrow 0^+$ con un $\log ft = 13,3$ es prohibida de segundo orden. Según Johnson y col. 1956 el factor de corrección es $[p^2 + (0,57 \pm 0,03) q^2]$, mientras que Spejewski y col. 1967 admiten que el espectro es similar a uno de prohibición única con $I = 2^-$, con lo que el factor sería $p^4 + \frac{10}{3} p^2 q^2 + q^4$. Puesto que la adopción de una u otra de las correcciones afecta al valor de la eficiencia del mismo modo (la diferencia entre una u otra es del orden del uno por mil), se ha adoptado, por comodidad de cálculo, el factor dado por Spejewski.

Las incertidumbres debidas al método de cálculo, a la imprecisión en la energía y a la imprecisión en la curva del ^3H que ha servido como patrón, conducen a una incertidumbre máxima del orden del 2,5%.

De las figuras 44, 45 y 46 se desprende que la concordancia entre los resultados experimentales y teóricos es excelente, para valores del parámetro de extinción mayores que tres; aceptable en el caso de que la muestra presente una extinción comprendida entre 1,5 y 3; y más bien pobre, cuando el parámetro de extinción es inferior a 1,5. Conviene señalar que, en nuestro equipo, el valor mínimo que puede tomar el parámetro de extinción es uno.

5.1.7 Talio 204

El ^{204}Tl tampoco es un emisor beta "puro", puesto que el 97,43% de las transiciones al nivel fundamental del ^{204}Pb se producen por desintegración beta menos, mientras que el 2,57% restante, al nivel fundamental del ^{204}Hg , son desintegraciones por captura electrónica.

En el estudio experimental se partió de una solución radiactiva patrón, preparada y calibrada por el L.M.R.I. de Francia. La composición química de la muestra era la siguiente: 15 μg de TlCl -marcado con ^{204}Tl - por gramo de HCl 0,1 N que actuaba como disolvente. La concentración de actividad era de

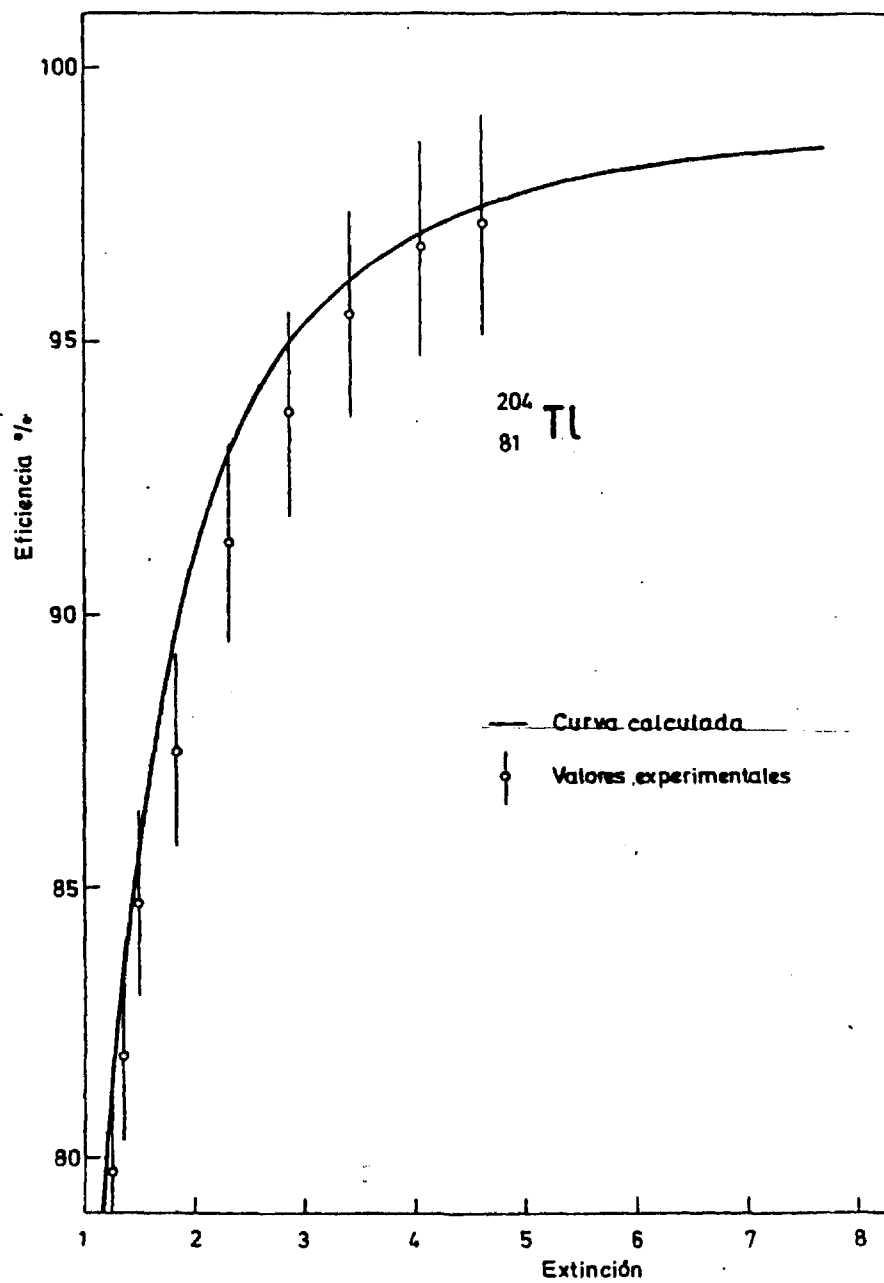


Fig. 47 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

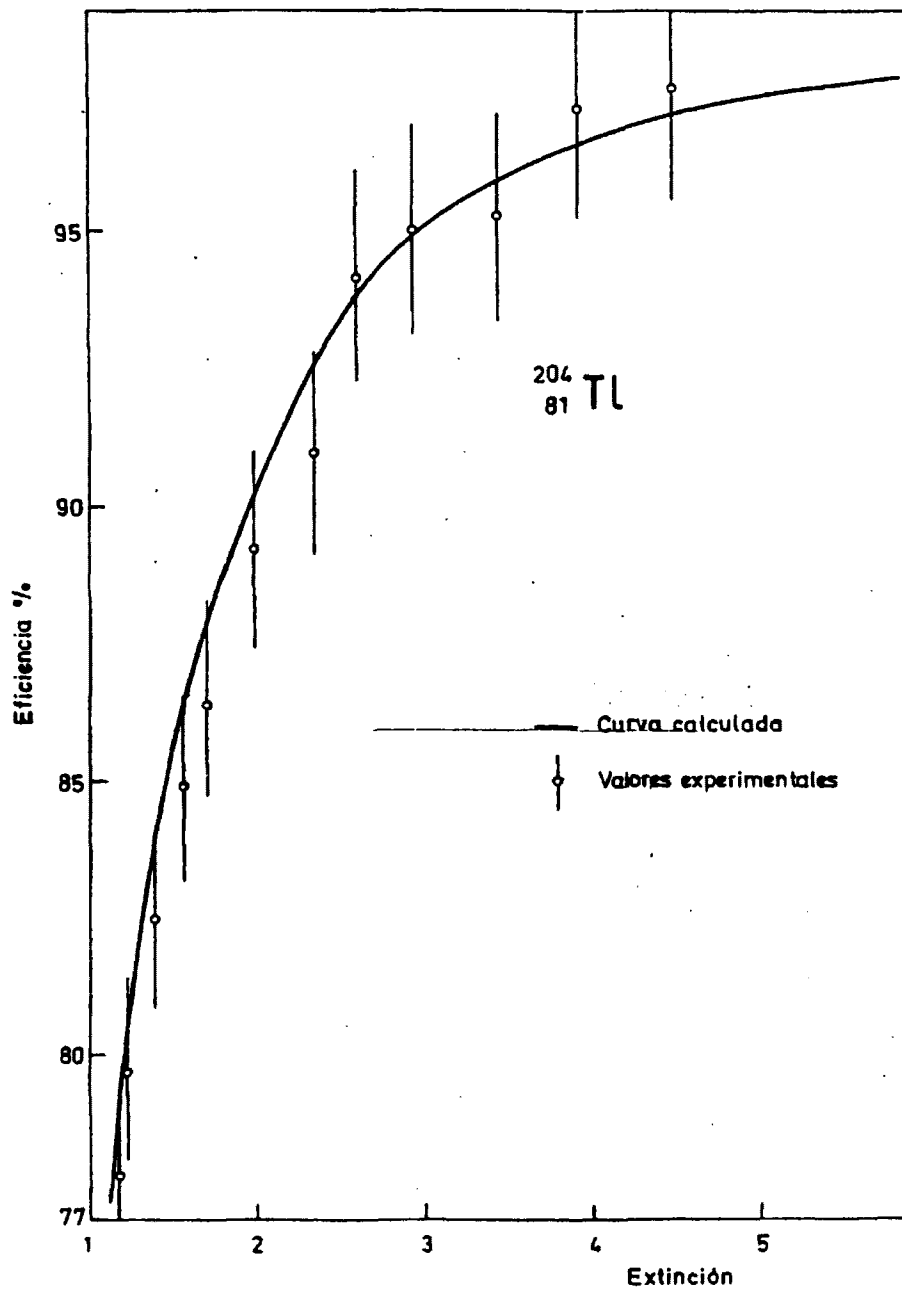


Fig. 48 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

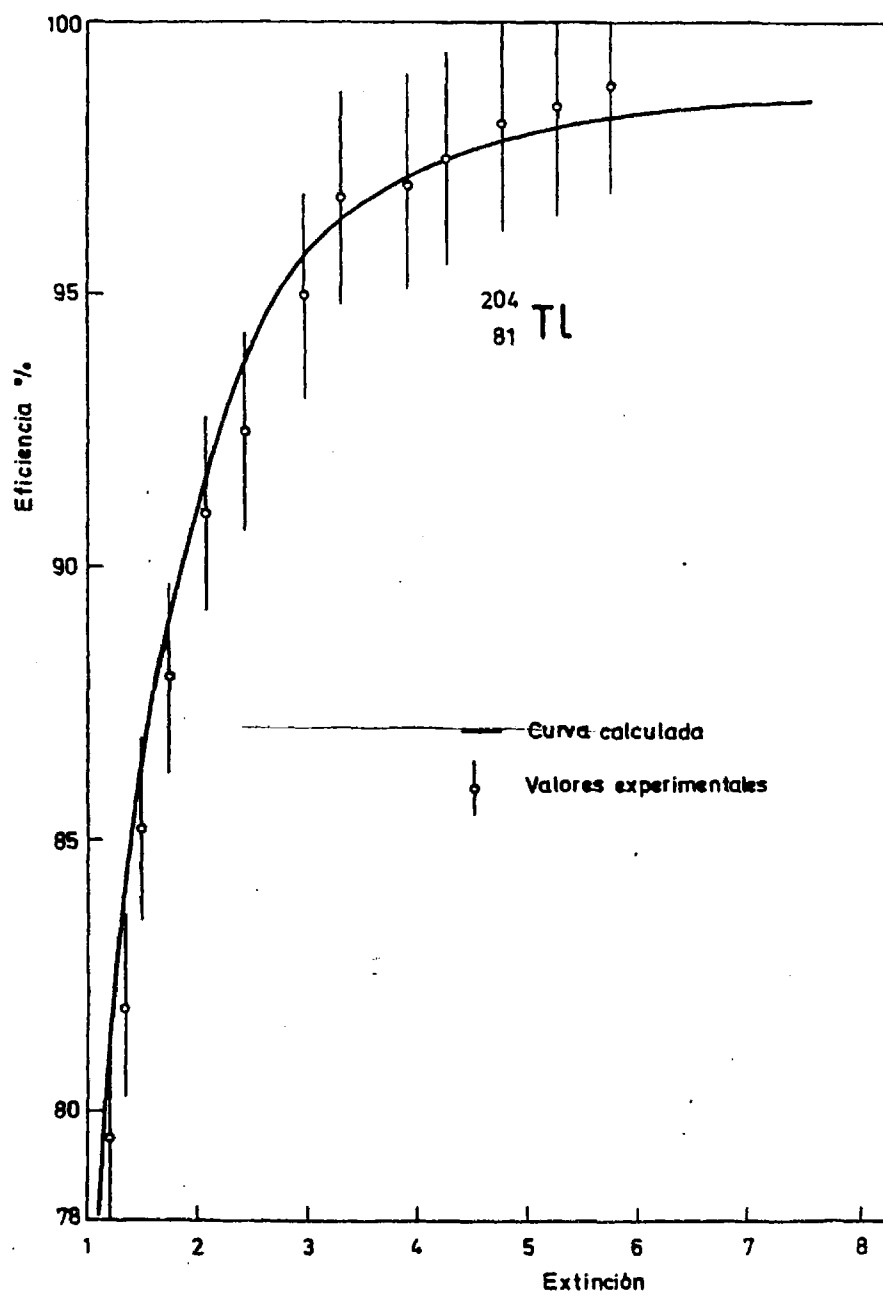


Fig. 49 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

$35,08 \pm 0,53 \mu\text{Ci/g}$, equivalentes a $(1,298 \pm 0,019) \times 10^6 \text{ Bq/g}$. Una dilución con HCl 0,1 N permitió disponer de una solución con una concentración de actividad de $0,429 \pm 0,009 \mu\text{Ci/g}$, o sea, $(1,587 \pm 0,031) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

Con el centelleador de tolueno se prepararon nueve muestras a base de añadir del orden de 100 mg de solución radiactiva a 2 cm³ de alcohol absoluto y adicionar después 13 cm³ de centelleador. Mediante el mismo procedimiento se prepararon trece muestras con centelleador de Insta-Gel. Para la preparación de las doce muestras con centelleador de dioxano, se incorporaron directamente en el centelleador del orden de 150 mg de la solución radiactiva diluida.

Los valores de las eficiencias obtenidas experimentalmente se han representado en las figuras 47, 48 y 49; los valores de las incertidumbres oscilan entre el 2 y el 2,5%.

Se ha adoptado como energía máxima del espectro beta el valor $763 \pm 1 \text{ keV}$, que resulta de promediar los valores publicados por Wolfson y col. - 1968 y Park y Christmas 1967. Se ha tomado como incertidumbre el triple de la desviación típica dada por los autores.

La transición β^- , con un $\log ft = 10,1$, es prohibida única con $\Delta I = 2^-$ y le corresponde un factor de corrección igual a $p^2 + q^2$, con lo que se desprecia un pequeño efecto residual de carga nuclear debido al elevado peso atómico del núcleo (Leutz y col. 1967); la contribución debida a este efecto es inferior al uno por mil en el cálculo de la eficiencia.

La concordancia entre los valores teóricos y los experimentales es buena dentro de los errores de ambos.

5.1.8 Estroncio ^{89}Sr

El ^{89}Sr es un nucleido emisor beta puro, ya que la transición beta negativa al nivel excitado de 909 keV del ^{89}Y tiene una intensidad despreciable ($9,5 \times 10^{-4}\%$) desde el punto de vista de la calibración.

Los valores experimentales representados en las figuras 50, 51 y 52 se han obtenido a partir de tres juegos de muestras preparadas en nuestro laboratorio. Se partió de una solución radiactiva de nitrato de estroncio, marcado con ^{89}Sr ; la composición química era de $5,79 \mu\text{g}$ de $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ por gramo de solución formada con HNO_3 1N.

La concentración radiactiva de la solución, en la fecha de calibración, era de $59,4 \pm 0,9 \mu\text{Ci/g}$, o sea, $(2,198 \pm 0,033) \times 10^6 \text{ Bq/g}$. Todos los resultados experimentales se corrigieron por el tiempo de decrecimiento radiactivo. Como el intervalo de tiempo transcurrido entre la calibración del patrón y la medida de las muestras fue de 123 días y el período de semidesintegración del ^{89}Sr es de $50,63 \pm 0,24$ días (obtenido promediando ponderadamente los valores publicados por Lagoutine y col. 1972, Flynn y col. 1965 Baba y col. 1971), la incertidumbre introducida por la imprecisión del período es del 0,78% y la debida a posibles impurezas, entre otras de ^{85}Sr , - del orden de 0,26%. Así pues, la incertidumbre total en la concentración de la actividad resultó ser del orden del 2,5%, en lugar del 1,5% que era de prever según el certificado de calibración expedido por el Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants de Saclay (Francia) que realizó la calibración.

Como la concentración radiactiva original era excesiva, se procedió a una dilución con ácido nítrico uno normal y se obtuvo una solución con una concentración de actividad de $0,507 \pm 0,016 \mu\text{Ci/g}$, equivalente a $(1,876 \pm 0,060) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

A partir de esta solución se prepararon 16 muestras de tolueno, a las

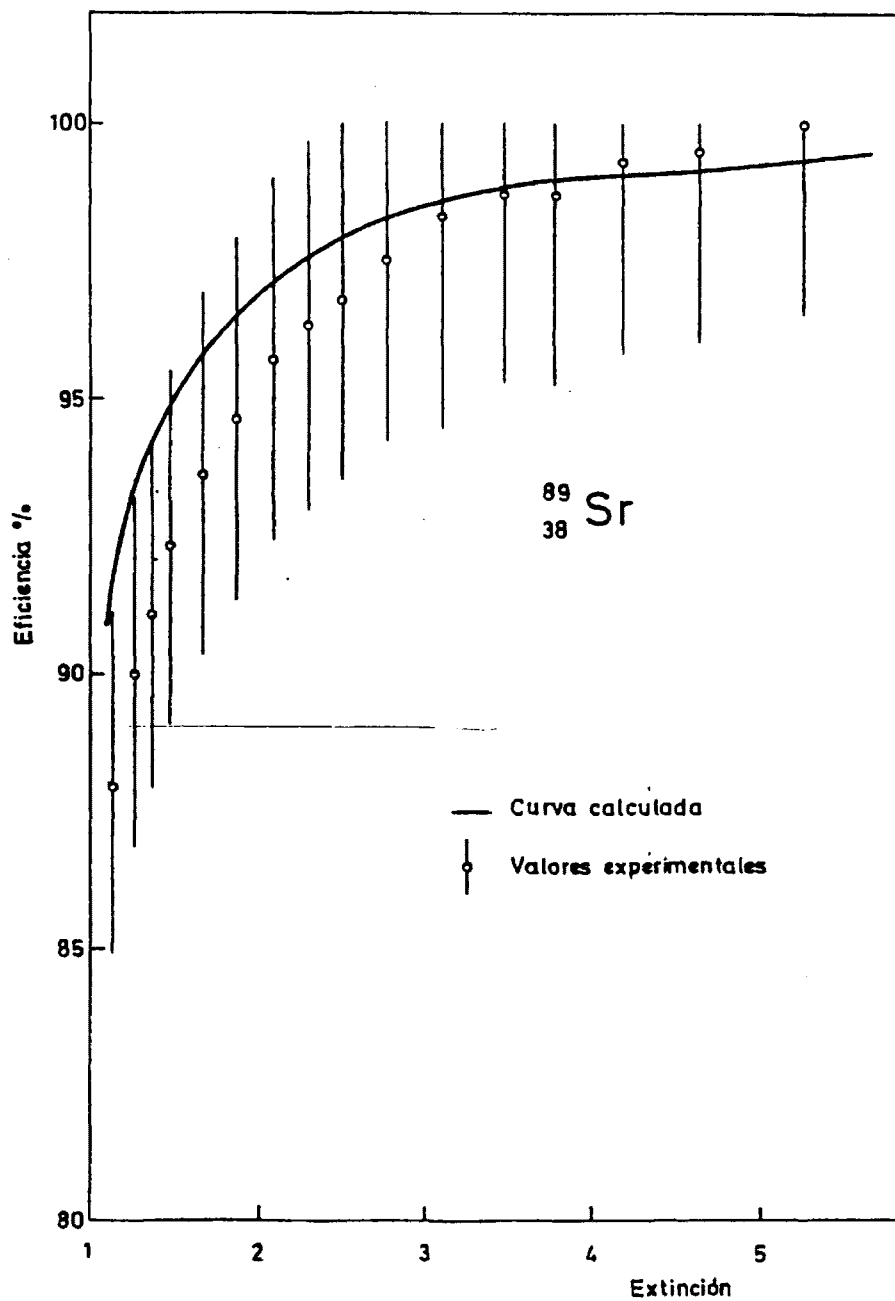


Fig. 50 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

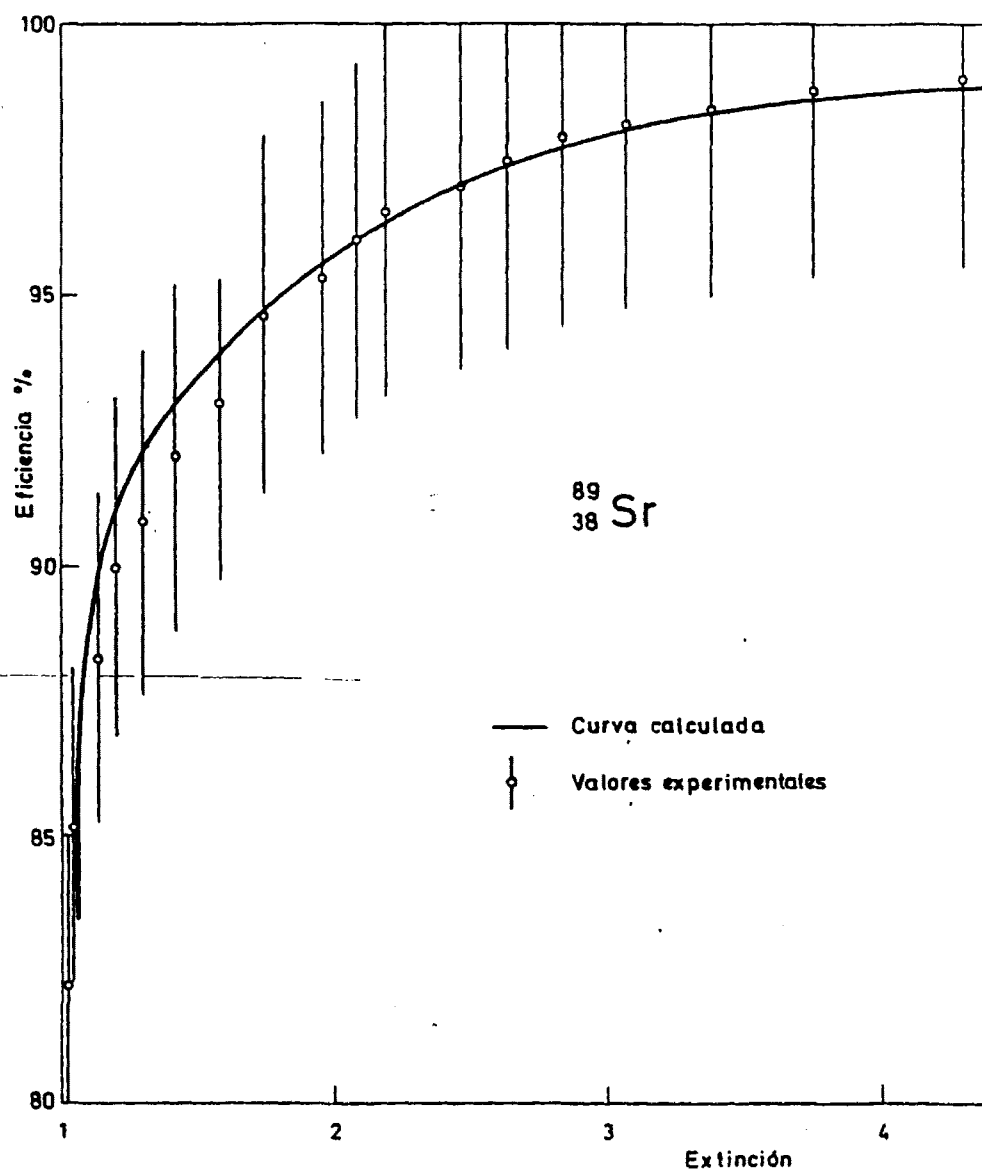


Fig. 51 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

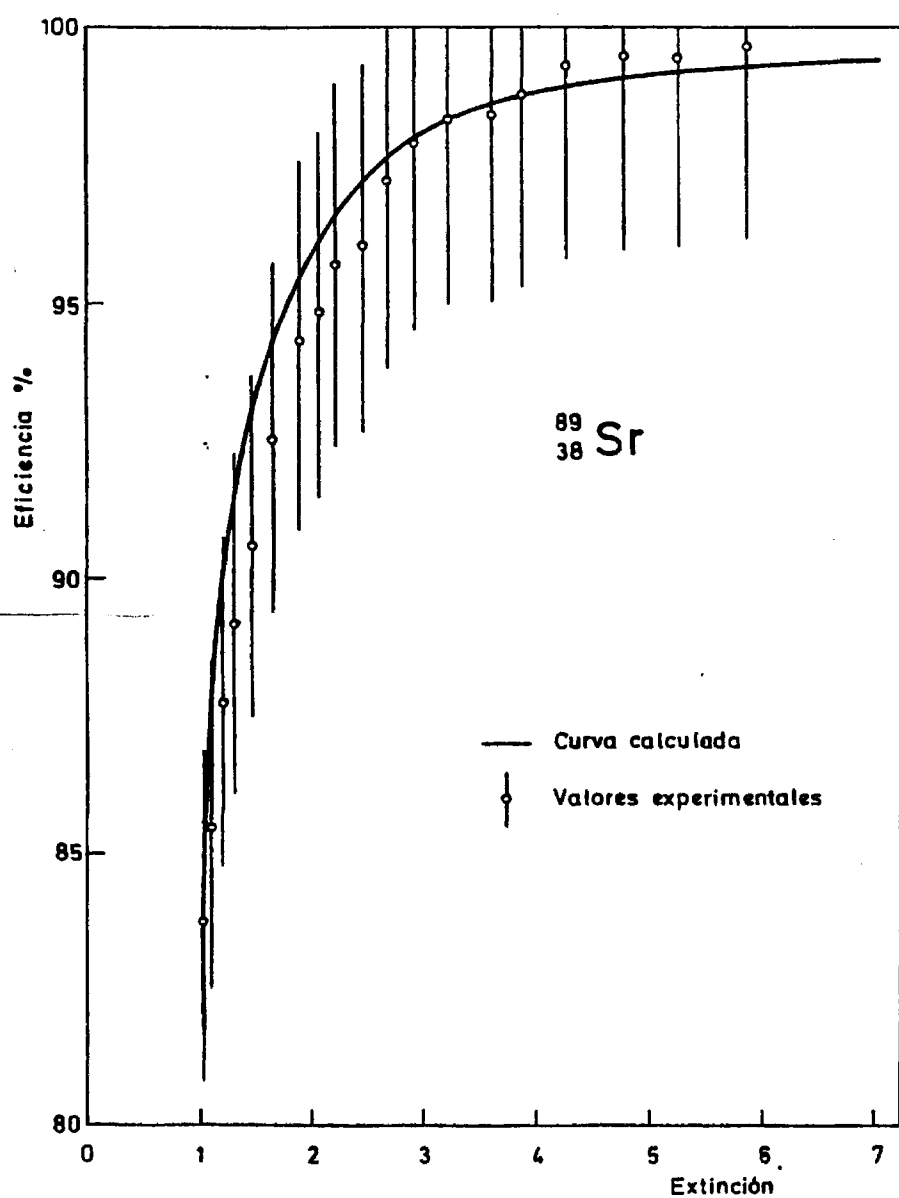


Fig. 52 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

que previamente se les había puesto 2 cm³ de etanol absoluto y pesos de solución del orden de 60 mg. De la misma manera se prepararon las 19 muestras con centelleador de Insta-Gel. Las 18 muestras con centelleador de dioxano se prepararon adicionando directamente al centelleador la solución radiactiva (también del orden de 60 mg).

Las incertidumbres experimentales son del orden del 3,5% para valores de la extinción comprendidos entre 1,1 y 6,5 (ver figuras 50, 51 y 52).

El valor adoptado para la energía máxima del espectro beta fue 1478 ± 3 keV, resultado de promediar los valores publicados por Wohn 1970 y Langer 1949 (un orden de magnitud más precisos que los de otros autores, por ejemplo Bisi y col. 1955).

La transición $\frac{5}{2}^+ \rightarrow \frac{1}{2}^-$, con $\log ft = 9,4$, es prohibida única con $\Delta I = 2^-$ y, por consiguiente, se ha aplicado el factor de corrección $p^2 + q^2$.

La incertidumbre total en la eficiencia de las curvas teóricas es del 2,5% o inferior, para los valores de la extinción comprendidos entre $Q = 1,2$ y $Q = 6,5$. Para valores de Q inferiores a 1,2 el error es mucho mayor, pudiendo llegar a más del 5%.

Comparando los resultados teóricos y experimentales representados en las figuras 50, 51 y 52 se observa, especialmente en las curvas correspondientes al centelleador de tolueno y al de Insta-Gel, que, sistemáticamente, los valores experimentales se van separando de los teóricos a medida que el parámetro de extinción disminuye. Esta discrepancia es típica de todas aquellas muestras que presentan microcristalizaciones. Las muestras de dioxano, sin embargo, se muestran aceptablemente concordantes con los resultados teóricos, lo que parece confirmar la validez del método de cálculo para el ⁸⁹Sr.

5.1.9 Fósforo 32

Con este nucleido de elevada energía -1703 keV- se efectuaron tres estudios de gran interés para la aplicación correcta del recuento por centelleo líquido: uno, encaminado a cuantificar el efecto de pared; otro, a comprobar la estabilidad y homogeneidad de las muestras, en relación con la forma química de la solución radiactiva incorporada; y, por último, confirmar la validez del método de cálculo de la eficiencia con este nucleido.

Para estudiar el efecto de pared se han utilizado frascos de vidrio -con bajo contenido en potasio- de 2,50 cm de diámetro interior y 2,74 cm de diámetro exterior. Se han preparado muestras con distintos volúmenes de centelleador: dos, tres, diez y quince centímetro cúbicos, de manera que el líquido presente forma cilíndrica con diferentes alturas. En el caso de dos y tres centímetros cúbicos, puesto que la altura es mucho menor que el diámetro, el efecto de pared predominante tiene lugar en las bases del cilindro líquido, y es de esperar que la eficiencia sea distinta que para volúmenes mayores (diez y quince centímetros cúbicos).

En las primeras pruebas se partió de una solución radiactiva de fosfato disódico marcado con ^{32}P . La composición química de la solución era de -50 μg de Na_2HPO_4 por gramo de HCl 0,1 N.

La dificultad de estabilizar las muestras de centelleo, cuando presentaban cierta extinción -como se estudiará más adelante- obligó a preparar un compuesto marcado, fácilmente soluble en los centelleadores empleados. El Laboratorio de Compuestos Marcados de la Sección de Isótopos de la J.E.N. nos suministró fosfato de tributilo marcado con ^{32}P , el cual se calibró por comparación con la solución patrón, procedente del L.M.R.I. de Francia y con un método absoluto de calibración por doble extrapolación, mediante centelleo líquido (Grau y col. 1975, Horrocks 1976). Así pues, en todas las experiencias con ^{32}P se recurrió a la solución radiactiva de fosfato de tributilo. La concentración radiactiva de este compuesto marcado resultó ser de $0,617 \pm 0,012 \mu\text{Ci/g}$, equivalentes a $(2,28 \pm 0,05) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

En las figuras 53, 54, 55 y 56 se han representado las curvas teóricas y los puntos experimentales que corresponden a los distintos volúmenes de centelleador; para cada volumen se preparó, además, un juego de muestras que contenía n-hexadecano marcado con ^3H , a fin de obtener la relación entre el factor de mérito y el parámetro de extinción.

Se puede concluir que el efecto de pared afecta en menos del uno por ciento a la eficiencia de detección para volúmenes superiores a dos cm^3 , cuando el diámetro del frasco de medida es muy superior al alcance máximo de las partículas beta.

Una cuestión de interés práctico es la que se refiere a la estabilidad de la muestra. En una muestra poco estable, pueden generarse pequeños cristales: situación muy frecuente cuando la sustancia radiactiva es un compuesto inorgánico, como ya se ha mencionado al estudiar el ^{89}Sr y el ^{35}S . Si la extinción es baja, el efecto de la microcristalización puede resultar indetectable, especialmente en el caso de emisores beta de elevada energía. Ahora bien, a medida que la extinción de la muestra aumenta, el efecto de la microcristalización reducirá la tasa de recuento.

En la figura 56 se ha representado la curva teórica y los valores experimentales de la eficiencia de un juego de muestras con centelleador de tolueno.

Aunque para extinciones bajas la eficiencia es prácticamente la misma, a medida que la extinción aumenta, la discrepancia en los valores experimentales se incrementa, llegando a valores del 17 por ciento para un parámetro de extinción $Q = 2$.

Estos resultados sugieren un criterio para juzgar la homogeneidad de las muestras, desde el punto de vista de posibles cristalizaciones o precipitaciones inapreciables por inspección ocular. El criterio consiste en estudiar la discrepancia entre las curvas teórica y experimental. Para obte-

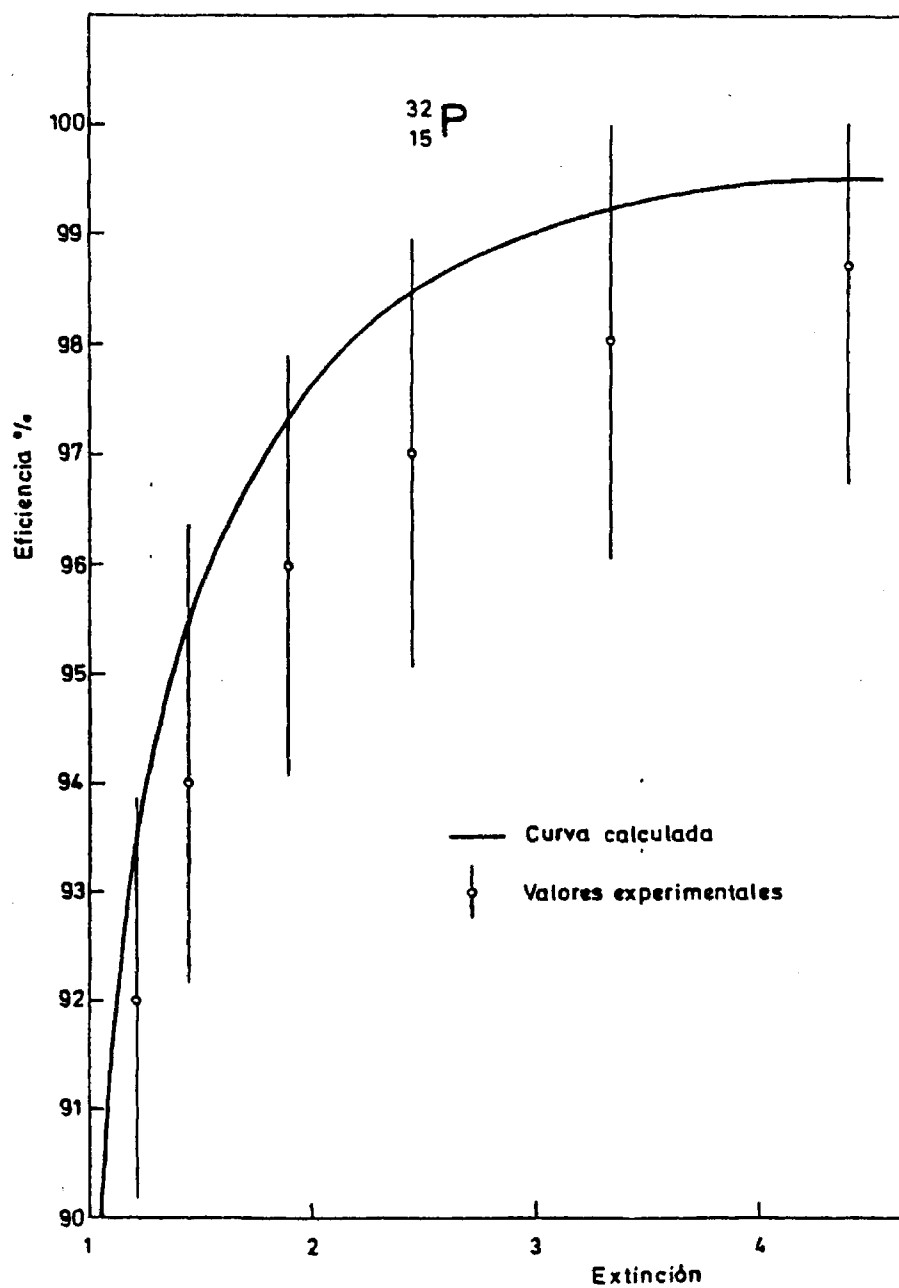


Fig. 53 - Eficiencia para un volumen de 2 cm³ de centelleador de tolueno.

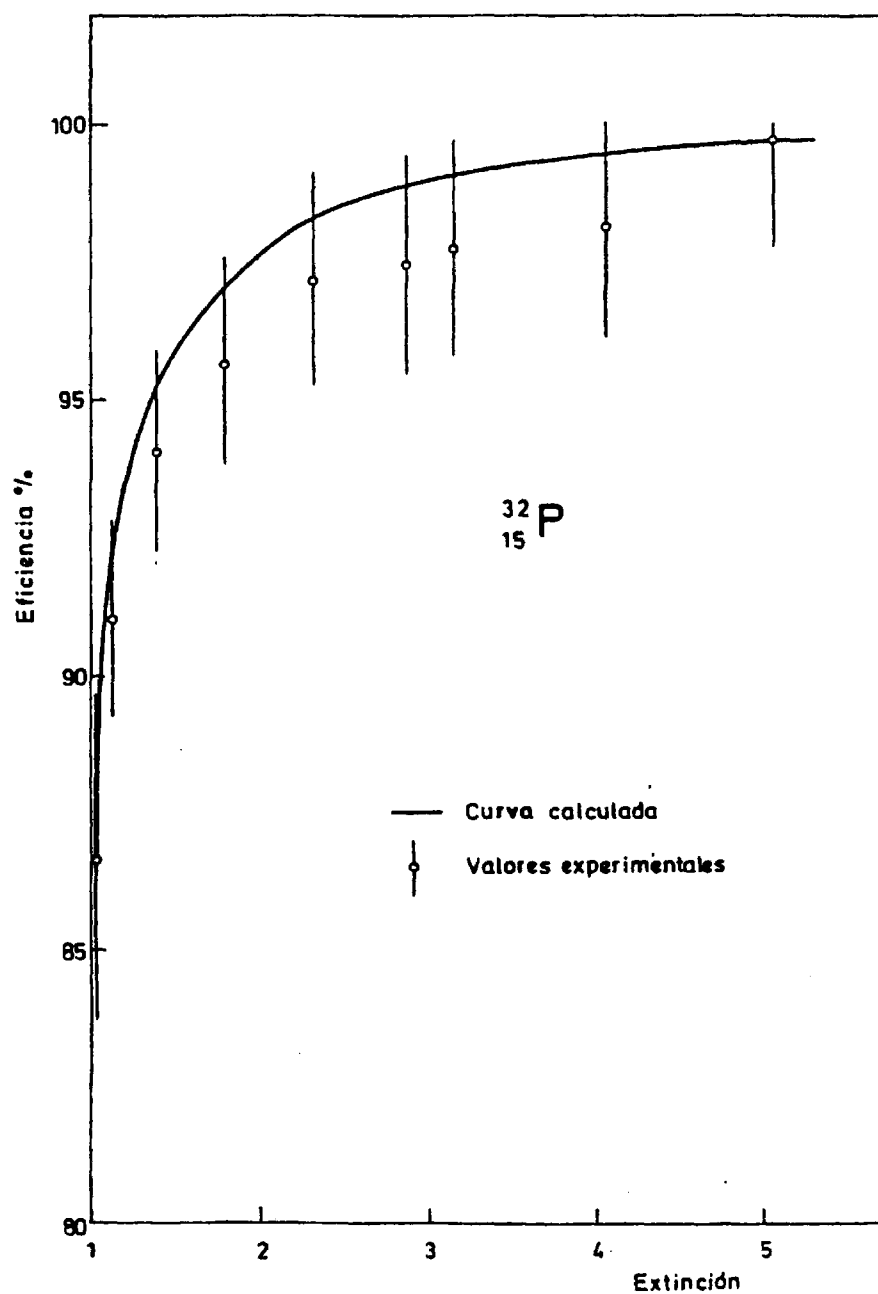


Fig. 54 - Eficiencia para un volumen de 3 cm³ de centelleador de tolueno.

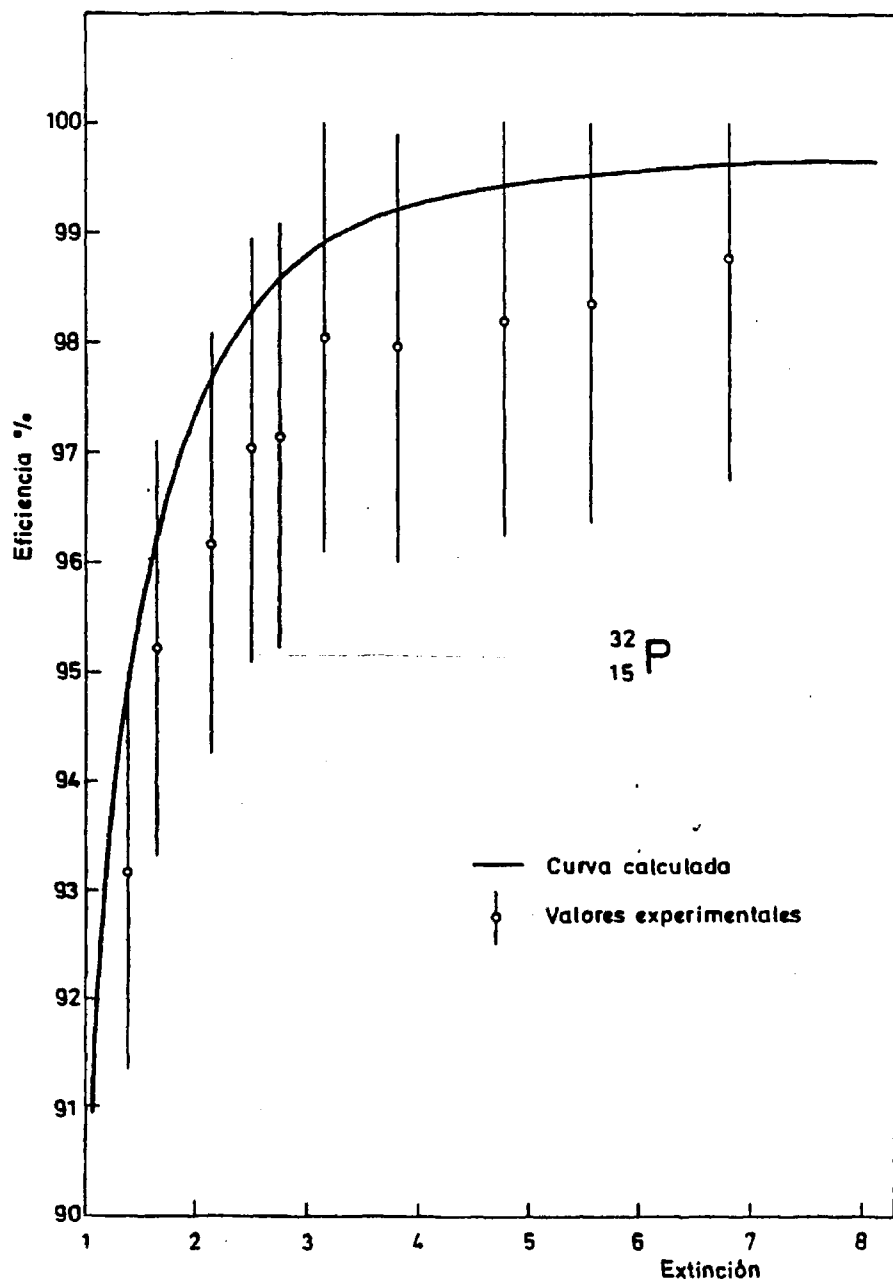


Fig. 55 - Eficiencia para un volumen de 10 cm³ de centelleador de tolueno.

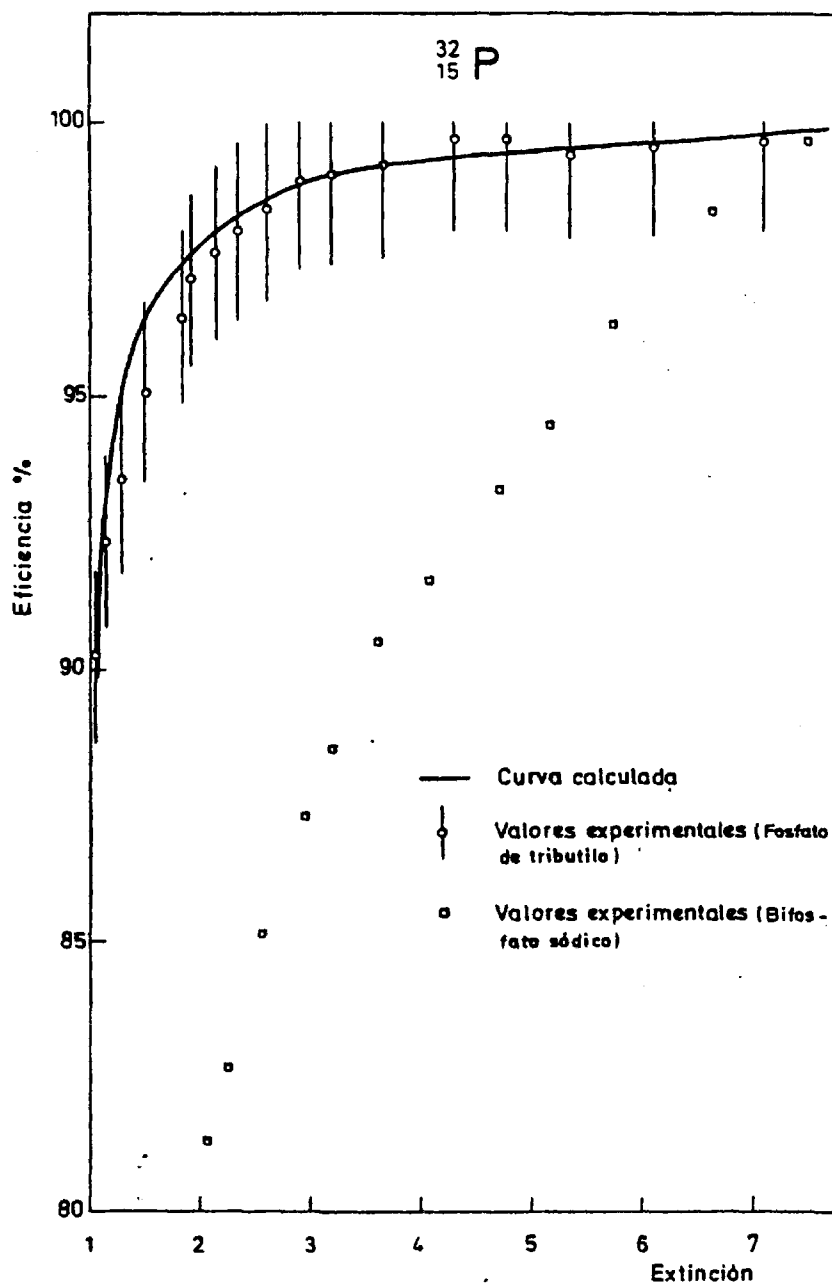


Fig. 56 - Eficiencia para 15 cm³ de centelleador de tolueno. Comparación del fosfato de tributilo con el fosfato disódico.

ner la curva experimental basta determinar el Q de una muestra y deducir la eficiencia a partir de la curva teórica; el cálculo de la actividad teórica es inmediato. Basta añadir cantidades crecientes de extintor -tetracloruro, acetona, ...- y computar la eficiencia de detección después de cada adición de extintor; el cociente entre el número de cuentas por unidad de tiempo y la actividad, expresada en desintegraciones en la misma unidad de tiempo, -permite deducir la eficiencia para cada extinción.

Este criterio no es de aplicación exclusiva al ^{32}P ; se puede emplear -con cualquier radionucleido; particularmente es recomendable su adopción en el caso en que el espécimen radiactivo sea una sal inorgánica.

Por otra parte, mediante el criterio descrito, se puede cuantificar la pérdida de eficiencia y, por tanto, el error en la actividad, determinada -mediante una curva experimental de calibración externa. Así pues, es posible, para un error prefijado, decidir si la técnica de preparación de la -muestra es adecuada o no a la calibración proyectada. Nuestra experiencia -en el campo de las medidas de soluciones acuosas por centelleo líquido y en solución homogénea, nos ha llevado a las siguientes conclusiones: muchas de las medidas realizadas en este campo pueden estar afectadas de errores inaceptables debido a la microcristalización; mediante el criterio descrito, es posible cuantificar las normas empíricas que se dan habitualmente para -conseguir una mejor solubilización en el centelleador de las sustancias mar cadas; y, por último, la estabilidad de una muestra, cuando presenta extinción, se puede conocer rápidamente mediante el método descrito.

Para estudiar la concordancia entre los valores teóricos y los experimentales de la eficiencia, en el caso particular de ^{32}P , se prepararon 17 -muestras con centelleador de tolueno, 14 con centelleador de dioxano y 15 -con centelleador de Insta-Gel. En todos los casos se añadió directamente al centelleador del orden de 400 mg de fosfato de tributilo, marcado con ^{32}P .

En las figuras 56, 57 y 58 se han representado los resultados experi-

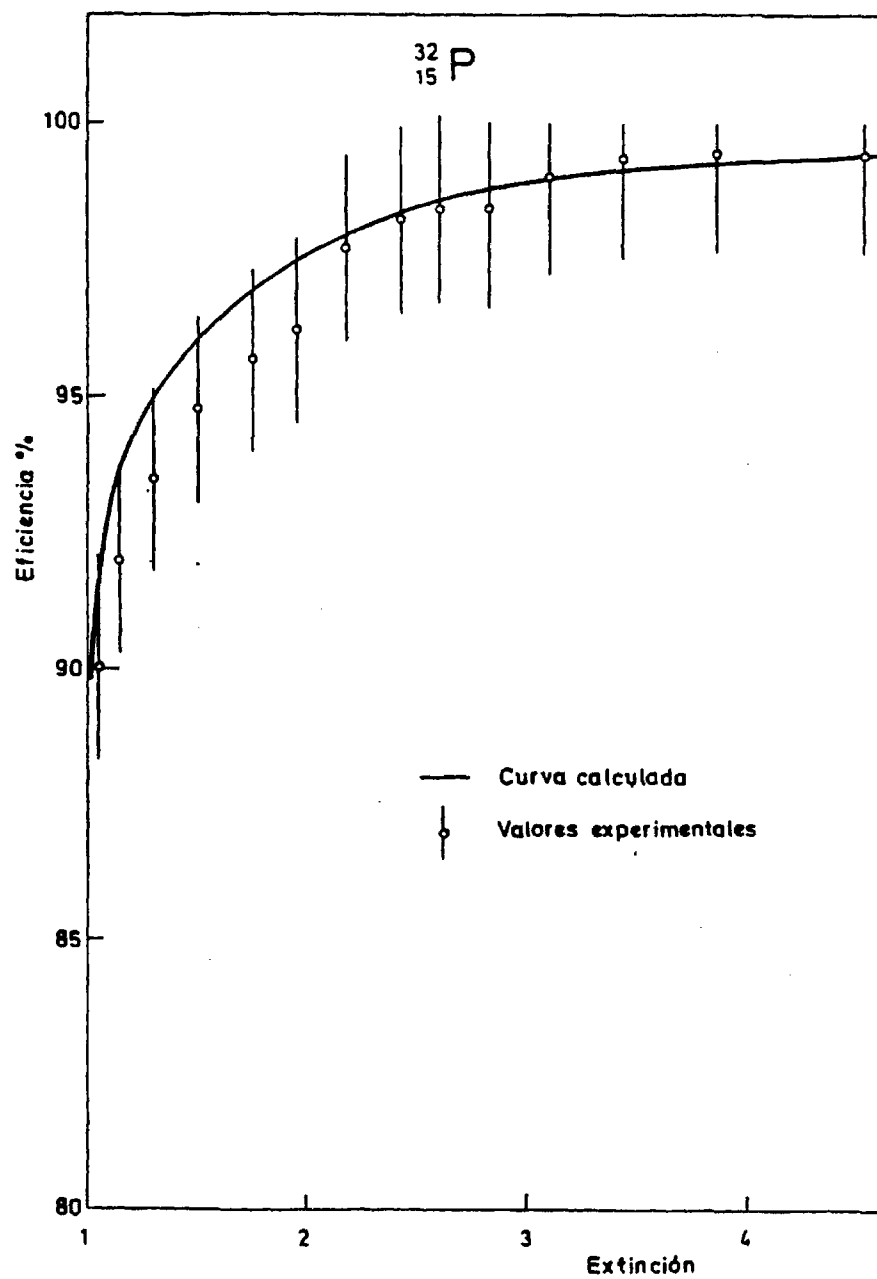


Fig. 57 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

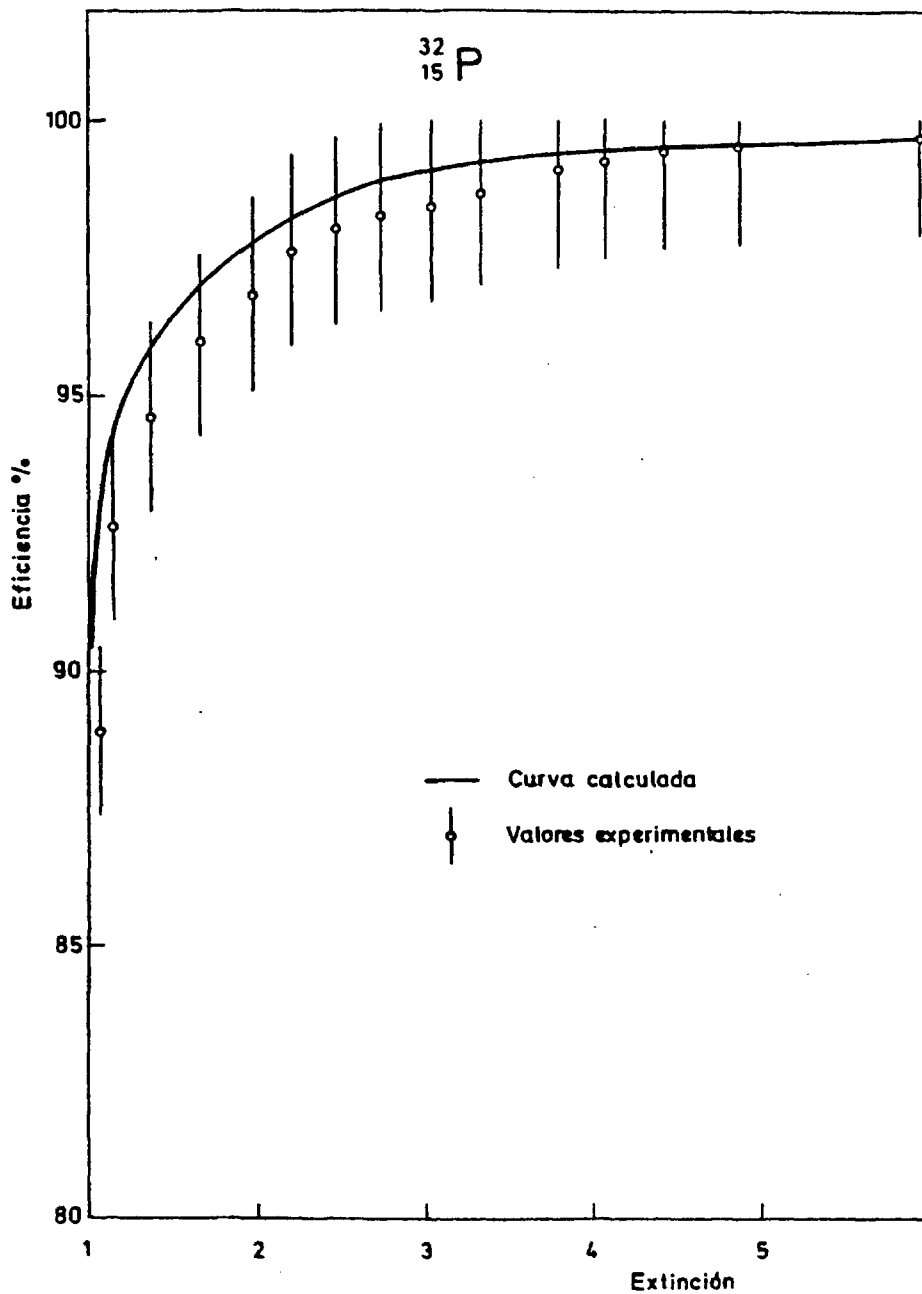


Fig. 58 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

mentales correspondientes a cada uno de los centelleadores usados. Las incertidumbres son del orden del 1,8% para valores de la extinción comprendidos entre 1,05 y 5.

Todos los resultados experimentales se han corregido por el tiempo de decaimiento radiactivo. El valor adoptado para el período de semidesintegración ha sido de $14,298 \pm 0,015$ días, que corresponde a la media ponderada de los valores publicados por Lagoutine y col. 1969, Goodier y col. 1966 Anders y col. 1957 y Perna 1969. La incertidumbre debida a la indeterminación en el período ha sido inferior al 0,3%, ya que las medidas se realizaron en menos de treinta días.

En el cálculo teórico de la eficiencia se ha admitido como mejor valor de la energía máxima del espectro beta $1703,0 \pm 1,2$ keV, que resulta de promediar ponderadamente los valores publicados por Booij 1971, Ch'ing Ch'eng-Jui y col. 1962, Flothmann y col. 1969, Moore y col. 1976, Nichols y col. 1961, Persson y col. 1971 y Zemann y col. 1971.

Como la transición $1^+ \rightarrow 0^+$, con $\log ft = 7,9$, es permitida, se ha tomado $C = 1$ en la fórmula (3.2.1), que permite calcular el espectro beta. Las incertidumbres de las eficiencias teóricas son inferiores al 2% para extinciones comprendidas entre 1,1 y 6. Por consiguiente, aún sin corregir por el efecto de pared, la incertidumbre total de la eficiencia teórica se mantendrá inferior al 3%.

A la vista de todo lo mencionado hasta aquí, se puede concluir que si la muestra se prepara correctamente, la concordancia entre los valores experimentales y teóricos es excelente; y, por consiguiente, para el ^{32}P y la energía beta considerada, el método de cálculo de la eficiencia es correcto y la discrepancia entre los resultados teóricos y experimentales es inferior al tres por ciento.

5.2 EMISORES BETA-GAMMA

En este apartado se estudiarán, desde el punto de vista experimental, dos nucleidos: el ^{203}Hg y el ^{60}Co y se compararán los resultados experimentales con las previsiones teóricas.

Ambos nucleidos se caracterizan por presentar emisión beta negativa en coincidencia con la emisión gamma. El ^{203}Hg muestra una conversión interna relativamente intensa, del orden del 14%, con una energía baja. El ^{60}Co se caracteriza por emitir dos fotones gamma en cascada y coincidentes con la emisión beta. Al contrario que el ^{203}Hg , el ^{60}Co tiene una conversión interna, en ambas transiciones de desexcitación, totalmente despreciable.

El caso de nucleidos con emisión beta-gamma no coincidente se estudiará en el apartado 5.5.

5.2.1 Mercurio 203

El ^{203}Hg se desintegra por emisión beta menos al nivel excitado de 279 keV del ^{203}Tl . Como la desexcitación de este nivel se produce con una vida media de 0,278 ns, la desintegración beta y la emisión gamma, o la conversión interna, son procesos simultáneos para el detector.

Se ha partido de una solución de 3 (cloromercuri) 2 metoxipropil-urea, conocido vulgarmente como Neohidrin, marcado con ^{203}Hg por la Sección de Isótopos de la JEN. La calibración de la solución se realizó en el Laboratorio de Metrología de la JEN mediante la técnica de espectrometría gamma. Puesto que no era posible preparar muestras puntuales, ya que la evaporación de las gotas depositadas hubiera producido al mismo tiempo el desprendimiento del ^{203}Hg , se procedió a calibrar una fracción de la solución. La concentración de la actividad resultó ser de $0,949 \pm 0,038 \mu\text{Ci/g}$, equivalentes a $(3,51 \pm 0,14) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

TABLA III

$^{203}_{80}\text{Hg}$

EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
K		
KLL	54,57 - 59,95	0,27
KLX	66,48 - 72,87	0,15
KXY	78,12 - 85,53	0,02
L	5,25 - 15,32	$9,3 \pm 1,0$
Conversión K	$193,66 \pm 0,02$	$13,4 \pm 0,2$
Conversión L	264	$3,91 \pm 0,17$
Conversión M	276	$0,94 \pm 0,09$
Conversión NO	278	$0,28 \pm 0,05$
β^-	max: 212 ± 3 med: 58 ± 2	100

EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
XK α	72,1	$10,2 \pm 0,3$
XK β	85,7	$2,77 \pm 0,09$
XL	8,95 - 15,27	$5,4 \pm 0,7$
γ	$279,19 \pm 0,02$	$81,4 \pm 0,2$

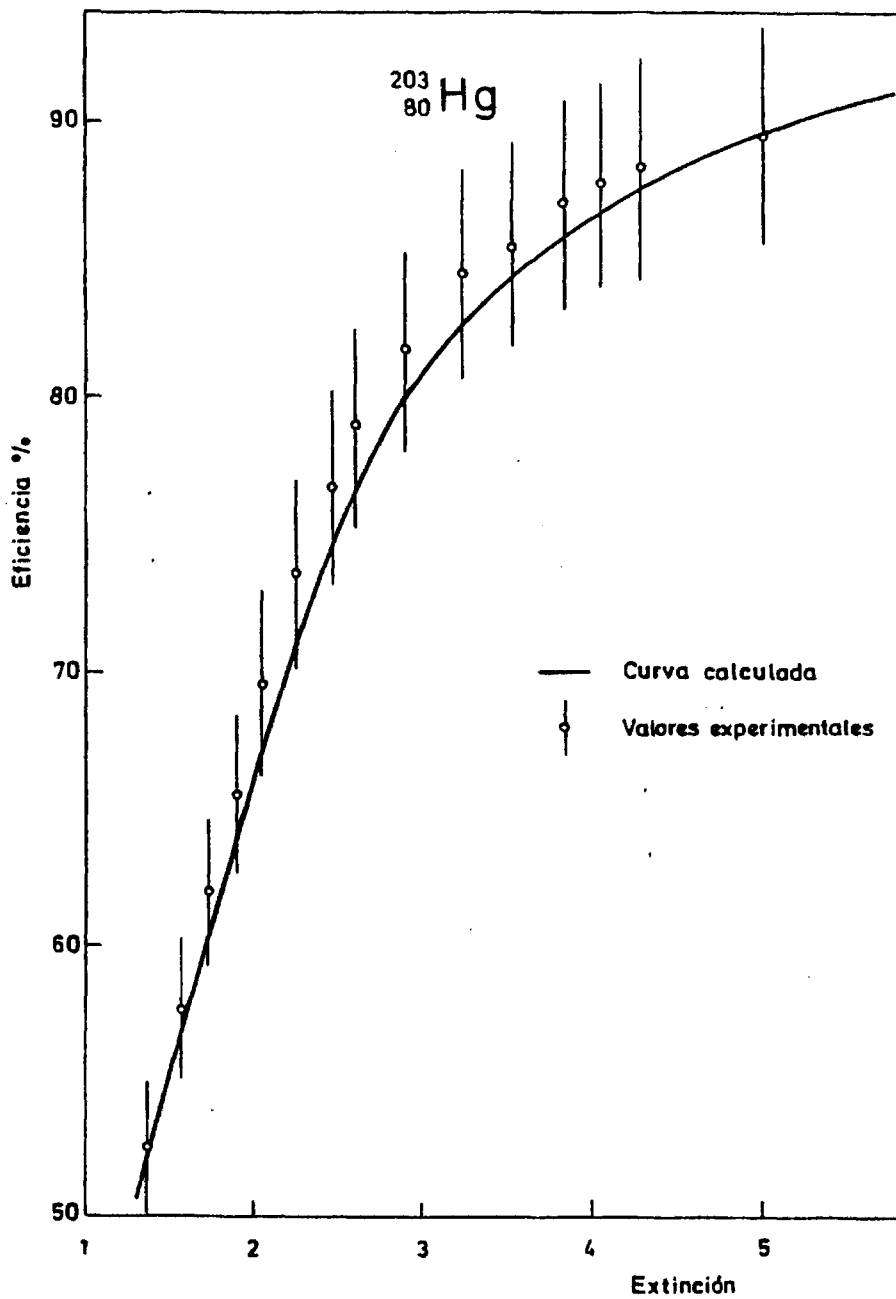


Fig. 59 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

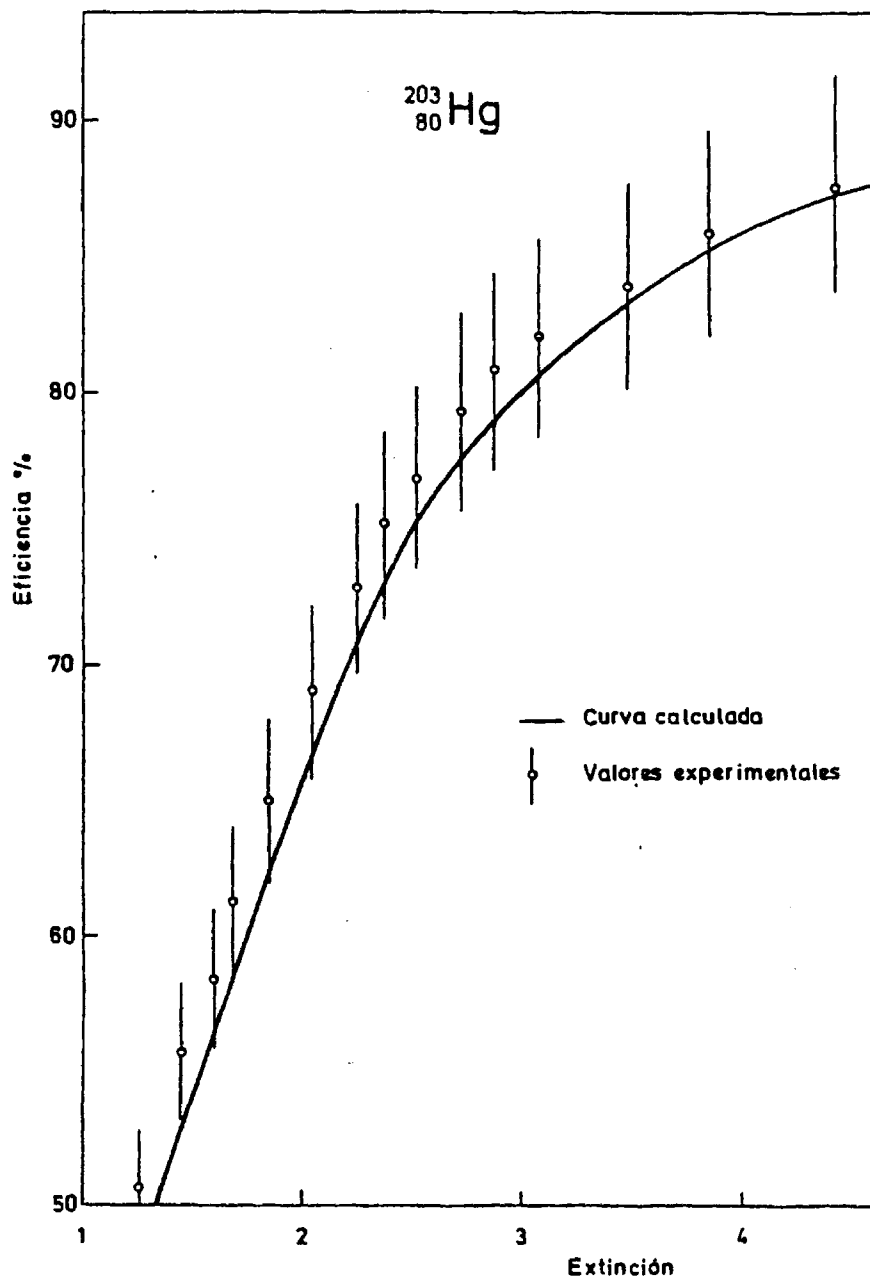


Fig. 60 - Eficiencia correspondiente al centellear de dióxano.

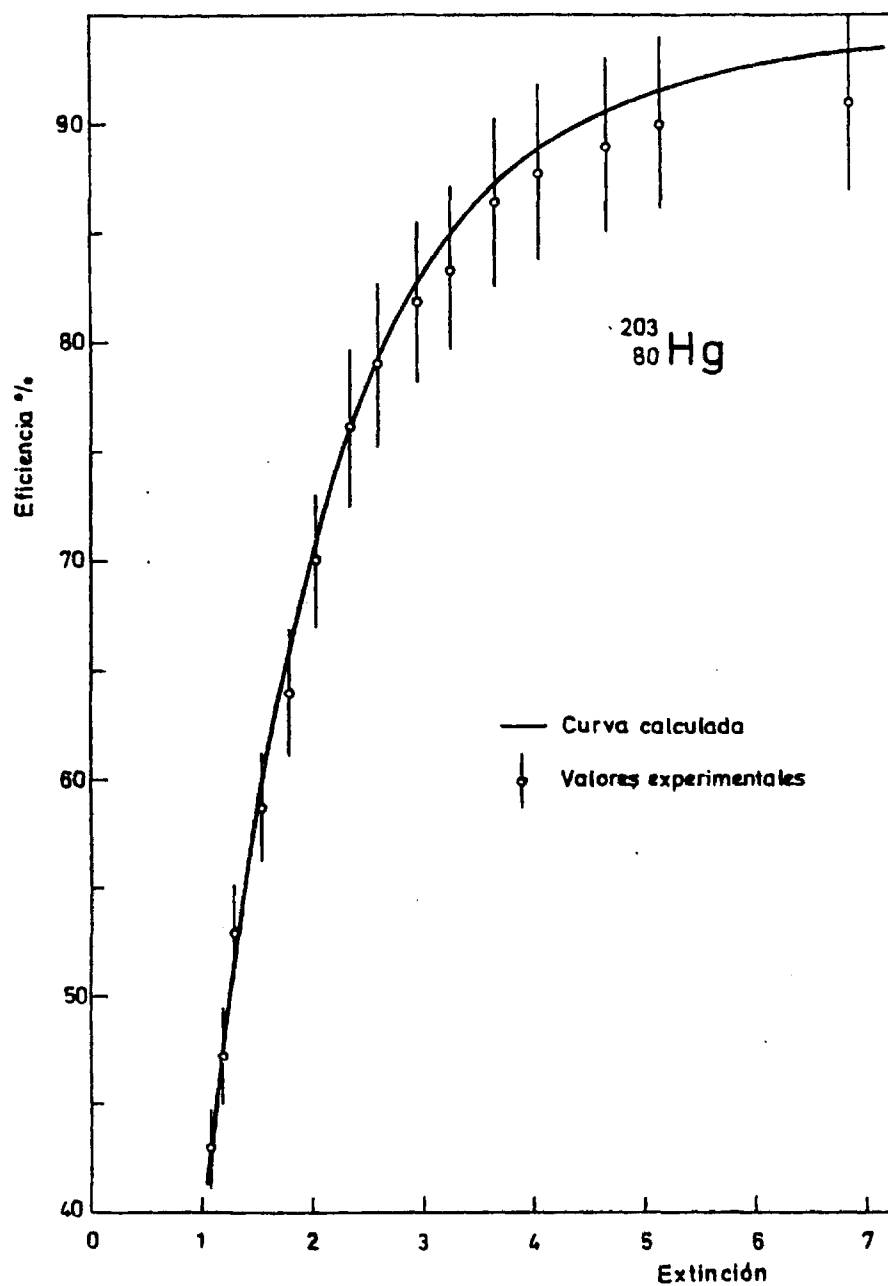


Fig. 61 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

La preparación de las muestras de centelleo, así como su medida, no -
presentó ningún tipo de dificultades. Tanto con el centelleador de tolueno
como con el de dioxano y el de Insta-Gel, se prepararon quince muestras, -
añadiéndose en todos los casos del orden de 70 mg de solución calibrada y -
forzándose posteriormente la extinción con tetracloruro de carbono.

Para el cálculo de la curva de eficiencia se emplearon los valores de
la tabla III extraídos de la recopilación de Legrand y col. 1974. Como pe-
ríodo de semidesintegración se adoptó el valor $46,8 \pm 0,2$ días, tomado tam-
bién de las tablas del citado autor.

Los resultados teóricos, así como los experimentales y sus incertidum-
bres, se han representado en las figuras 59, 60 y 61. En el caso del cente-
lleador de Insta-Gel, el acuerdo entre los valores experimentales y los de
la curva teórica es muy bueno. La incertidumbre de los puntos experimenta-
les es del orden del 4,5% y otro tanto puede atribuirse a la curva teórica.

En las curvas del dioxano y del tolueno (figuras 60 y 59, respectiva-
mente) los puntos experimentales se encuentran situados, en algunos casos,
por encima de la curva teórica; esto podría deberse al hecho de que los -
errores sistemáticos son predominantes, en relación a los aleatorios.

5.2.2 Cobalto 60

El ^{60}Co es un nucleido que se desintegra por emisión β^- al nivel exci-
tado de 2,5 MeV del ^{60}Ni . La desexcitación de este nivel, con una vida me-
dia de 3,3 ps, se produce mediante la emisión de un fotón de 1,17 MeV y el
núcleo queda en un estado excitado de 1,33 MeV. La transición al nivel fun-
damental desde este nivel excitado, cuya vida media es de 0,73 ps, se efec-
túa con la emisión de un fotón de 1,33 MeV. Así pues, la emisión beta, a -
efectos de la detección, es simultánea con la emisión de los dos fotones -
gamma.

La solución radiactiva utilizada en el trabajo experimental fue preparada por la Sección de Isótopos de la JEN y la composición de la misma era de $10 \mu\text{g/g}$ de CoCl en HCl $0,1\text{N}$. Para la calibración de esta solución se procedió a preparar cinco muestras puntuales, por el procedimiento de depositar una cantidad pesada de solución -del orden de 50 mg - sobre un soporte de "mylar" y evaporar después a temperatura ambiente. A fin de evitar que los cristales formados se desprendieran del soporte, se recubrió éste con una película adhesiva de plástico.

Las muestras se compararon mediante espectrometría gamma con una fuente patrón, del mismo radionucleido, calibrada por el Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra). El valor de la concentración de actividad resultó ser de $(4,16 \pm 0,15) \times 10^4 \text{ Bq/g}$, equivalentes a $1,12 \pm 0,04 \mu\text{Ci/g}$.

A partir de la solución calibrada se prepararon trece muestras con centelleador de tolueno. Para conseguir que fueran estables se incorporaron $0,1 \text{ cm}^3$ de HCl $0,1 \text{ N}$, del orden de 80 mg de solución radiactiva, 3 cm^3 de etanol absoluto y 12 cm^3 de centelleador de tolueno. Las 15 muestras con centelleador de dioxano se obtuvieron adicionando, a los 15 cm^3 del centelleador, del orden de 100 mg de solución radiactiva y $0,01 \text{ cm}^3$ de acético concentrado, a fin de evitar la posible aparición de quimiluminiscencia. Por último, las quince muestras de Insta-Gel se prepararon agregando al centelleador del orden de 100 mg de solución radiactiva y $0,2 \text{ cm}^3$ de agua destilada. En todas las muestras sometidas a extinción se empleó tetracloruro de carbono como extintor. Los resultados experimentales y sus incertidumbres se han representado en las figuras 62, 63 y 64.

En el cálculo teórico de la eficiencia se ha adoptado como energía máxima del espectro beta el valor $317,9 \pm 0,1 \text{ keV}$, publicado por Wolfson y col. 1968; todos los demás valores publicados se han rechazado por ser un orden de magnitud menos precisos.

La transición $5^+ \rightarrow 4^+$, con un $\log ft = 7,5$, se ha tomado como permiti

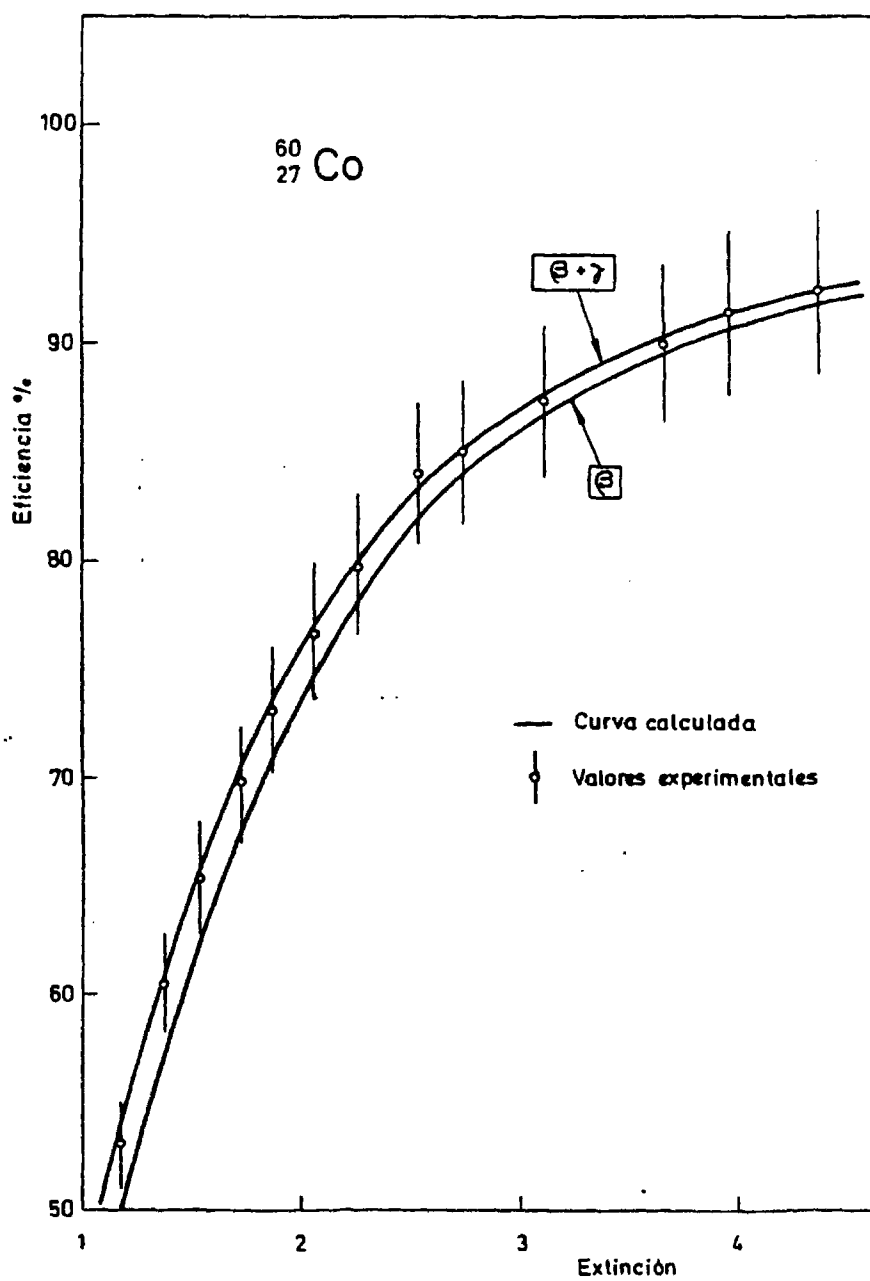


Fig. 62 - Eficiencia correspondiente al centelleador de taluano.

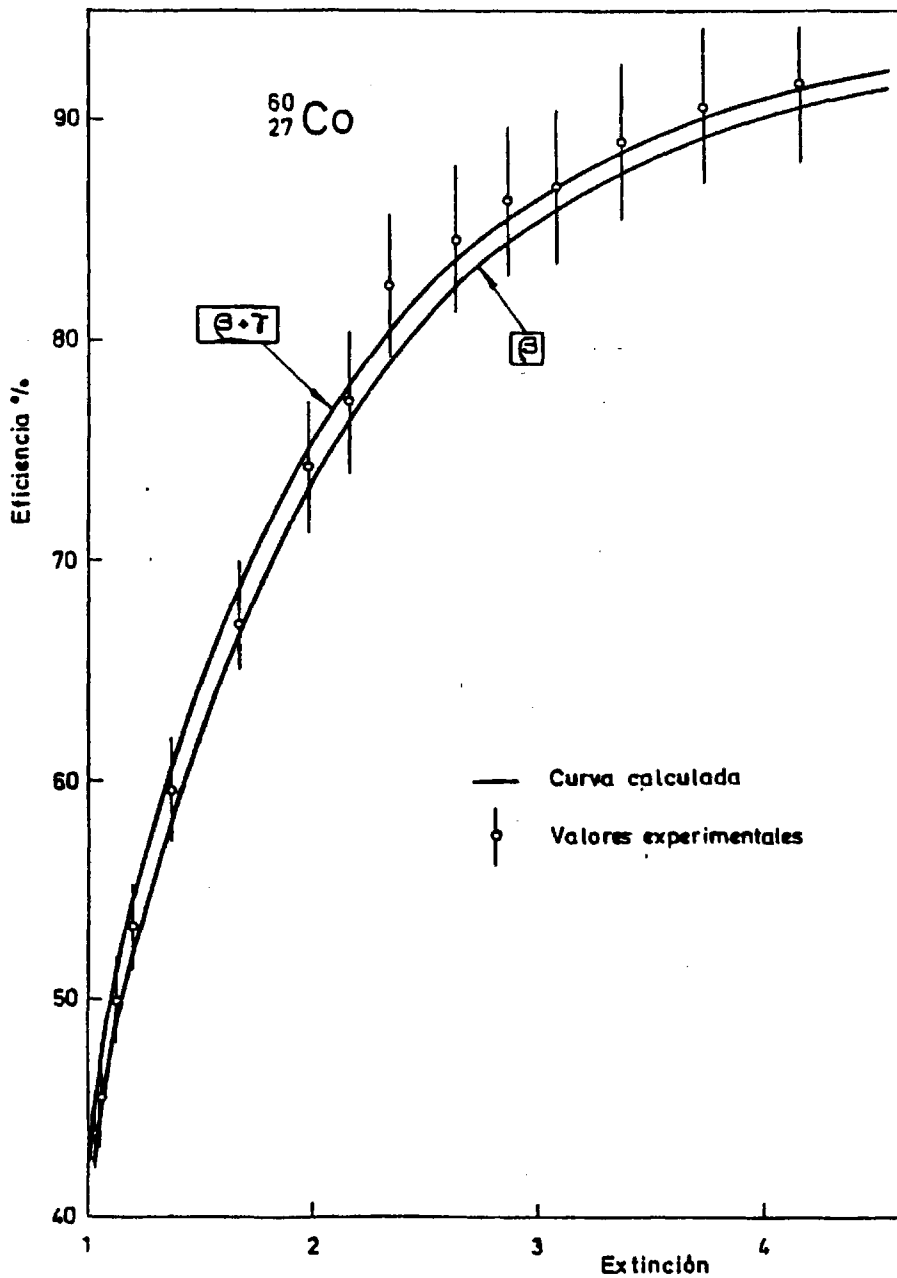


Fig. 63 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

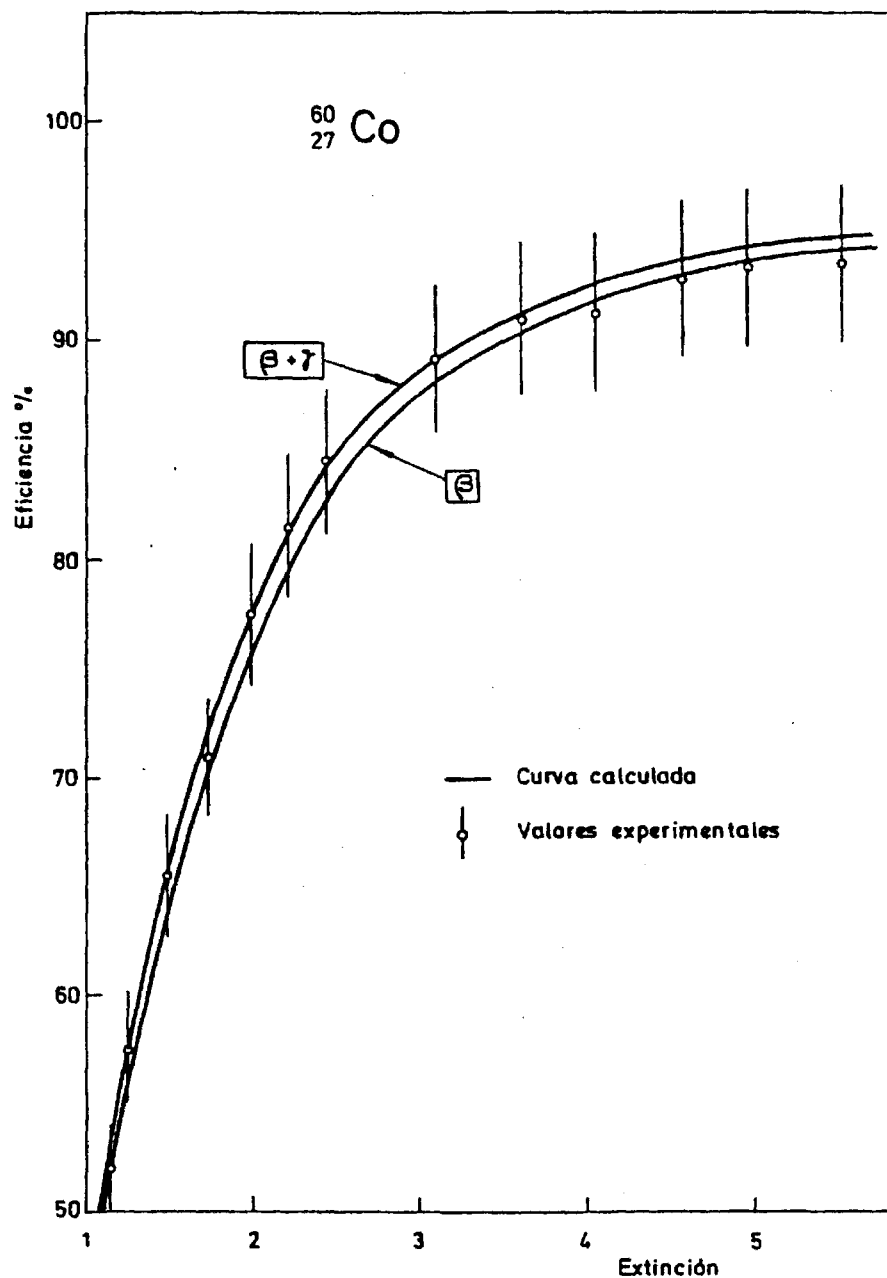


Fig. 64 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

da. Las incertidumbres debidas a la energía y al factor kB , en el cálculo - de la extinción por autoionización, dan una incertidumbre total del 4%. En las figuras 62, 63 y 64 se han trazado dos curvas teóricas: una de ellas - (β) se ha calculado, exclusivamente, a partir de la desintegración beta - del ^{60}Co , despreciándose la emisión gamma; la otra curva ($\beta + \gamma$) tiene en - cuenta la emisión de partículas beta y su coincidencia con los fotones de - 1,17 y 1,33 MeV, que a su vez son también coincidentes entre sí.

Para el centelleador de tolueno (fig. 62) se observa que la curva, de- bida exclusivamente a la emisión beta, se ajusta aceptablemente para valo- res del parámetro de extinción superiores a 1,5. Para $Q < 1,5$, la curva (ρ) se aparta apreciablemente de los valores experimentales. Por ejemplo, cuan- do $Q = 1,25$, la discrepancia entre las dos curvas es del 6%, mientras que - la incertidumbre en los valores experimentales es del 3%. Con los centellea- dores de dioxano e Insta-Gel, sin embargo, la curva (β) es aceptable hasta valores del parámetro de extinción tan bajos como 1,13, en el caso del Ins- ta-Gel, y 1,03 en el caso del dioxano.

5.3 EMISORES BETA EN EQUILIBRIO RADIATIVO

El método de calibración de nucleidos beta simples se puede ampliar al caso de dos o más nucleidos en equilibrio: bien secular, bien transitorio.

De especial interés, desde el punto de vista de las aplicaciones, son los nucleidos en equilibrio resultantes de la fisión nuclear; de ellos se - han elegido el $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ y el $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$.

El ^{90}Sr es uno de los nucleidos cuya medida es imprescindible en cual- quier programa destinado a estudiar el impacto de una instalación nuclear - sobre el medio ambiente. La calibración del espectrómetro de centelleo con este nucleido presenta el inconveniente de que no existen patrones exentos de ^{90}Y , debido al corto período de semidesintegración de este último nucleí- do. Por otra parte, la calibración del ^{90}Y no resulta práctica debido a su

corto período.

El método de cálculo de la eficiencia, desarrollado en esta memoria, - permite obtener las curvas de calibración de cada uno de estos nucleidos - por separado y en equilibrio. Así pues, de la concordancia entre los datos experimentales y teóricos de las muestras en equilibrio se desprende la bondad del método en el caso de muestras separadas. Todo lo dicho hasta aquí - es válido también para la mezcla ^{144}Ce - ^{144}Pr .

5.3.1 Estroncio-90/Itrio-90

El estroncio-90 es un nucleido emisor beta simple, con un período de - semidesintegración de 28,8 años, ligado genéticamente al ^{90}Y , también emisor beta simple, que con un período de 64,1 horas se convierte en ^{90}Zr , nucleido estable.

Cuando el ^{90}Sr y el ^{90}Y se hallen en equilibrio, la actividad del primero será igual a la del segundo, y la eficiencia de detección de la mezcla será igual al valor medio de las eficiencias de detección de cada uno de - los nucleidos radiactivos. Desde el punto de vista experimental, la eficiencia de detección se obtendrá dividiendo la tasa de recuento por el doble de la tasa de desintegración del ^{90}Sr .

Se tomó como patrón una solución radiactiva, calibrada por el L.M.R.I. de Saclay (Francia), cuya composición química era de $10\mu\text{g/g}$ $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ más - $10\mu\text{g/g}$ $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$ en HNO_3 0,1 N. La concentración radiactiva del patrón era - de $26,94 \pm 0,32\mu\text{Ci/g}$, o sea, $(9,97 \pm 0,12) \times 10^5$ Bq/g. Dado que esta concentración resultaba demasiado elevada para nuestras medidas, se procedió a una dilución con HNO_3 0,1 N y se llegó a una concentración radiactiva de - $0,367 \pm 0,008\mu\text{Ci/g}$, equivalentes a $(1,358 \pm 0,030) \times 10^4$ Bq/g.

A partir de la solución radiactiva diluida se prepararon 13 muestras -

con centelleador de tolueno. Para mejorar la estabilidad del nucleido se pu so en cada uno de los frascos de medida las siguientes sustancias: $0,1 \text{ cm}^3$ de HNO_3 $0,1\text{N}$, del orden de 200 mg de solución radiactiva, 3 cm^3 de etanol absoluto y 12 cm^3 de centelleador de tolueno. Las 13 muestras con centellea dor de dioxano se obtuvieron mediante la incorporación directa, a los 15 - cm^3 de centelleador, de unos 200 mg de solución radiactiva. Por último, las 15 muestras con centelleador de Insta-Gel se consiguieron estabilizar aña diendo 15 cm^3 de centelleador a $0,2 \text{ cm}^3$ de agua que, previamente, se habían mezclado con 200 mg de solución radiactiva. Como sustancia extintora se em pleó el tetracloruro de carbono.

En el cálculo de la eficiencia teórica del ^{90}Sr , se ha tomado como - energía máxima del espectro beta el valor $546 \pm 2 \text{ keV}$, que resulta de prome diar los resultados publicados por Daniel y col. 1964, y por Martin 1976. - La transición $0^+ \rightarrow 2^-$, con un $\log ft = 9,4$, es prohibida con factor de for ma único ($\Delta I = 2^-$). Las incertidumbres debidas a la energía, al patrón de tritio y al factor k_B , en la corrección por autoionización, dan el 3,5% co mo cota superior de la incertidumbre total.

Para el ^{90}Y se ha elegido, como energía máxima del espectro beta, el - valor $2276 \pm 6 \text{ keV}$, que es el valor medio ponderado de los resultados publi cados por Nagarajan 1971, Daniel y col. 1964, Flothmann y col. 1975 y Lan ger y col. 1964. La transición $2^- \rightarrow 0^+$ con un $\log ft = 9,2$ es prohibida - con factor de forma único ($\Delta I = 2^-$). En este caso, la incertidumbre total debida a la energía y a k_B es del orden del 2,5%.

En las figuras 65, 66 y 67 se han representado las curvas teóricas y - los resultados experimentales de la eficiencia, obtenidos como se ha descri to al principio de este apartado. Para calcular la eficiencia teórica se - han computado las eficiencias de cada uno de los nucleidos y después se han promediado para cada factor de mérito.

Como puede observarse en las gráficas, la incertidumbre experimental -

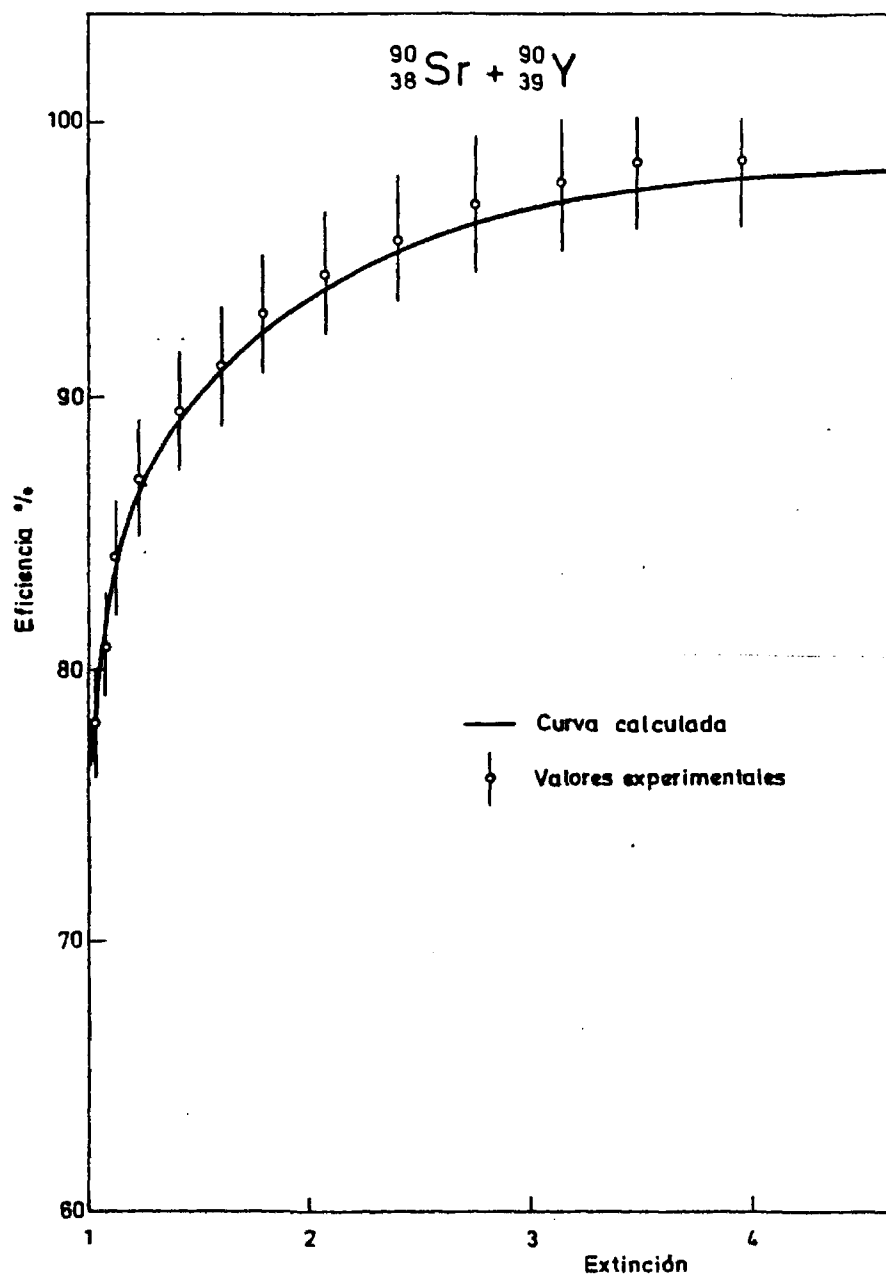


Fig. 65 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

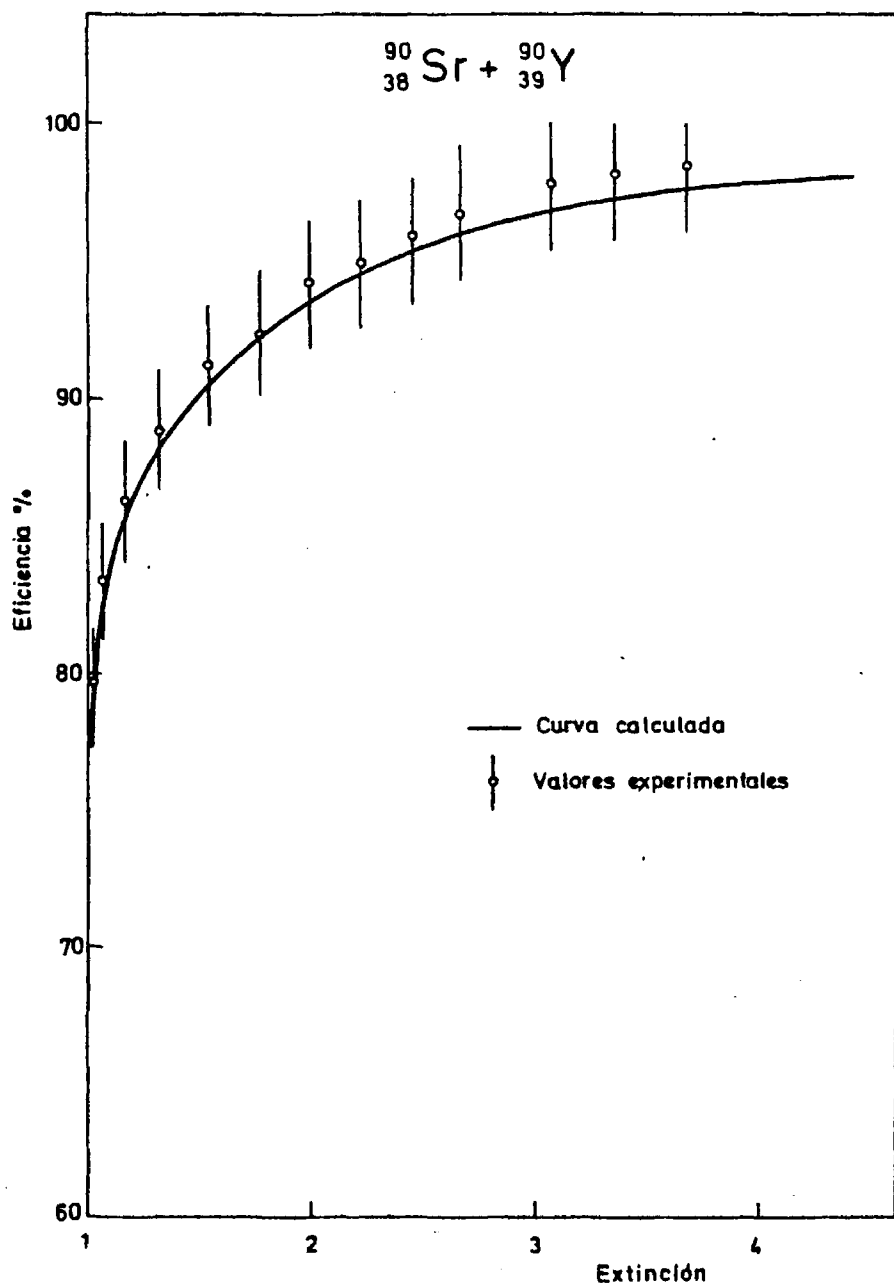


Fig. 66 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

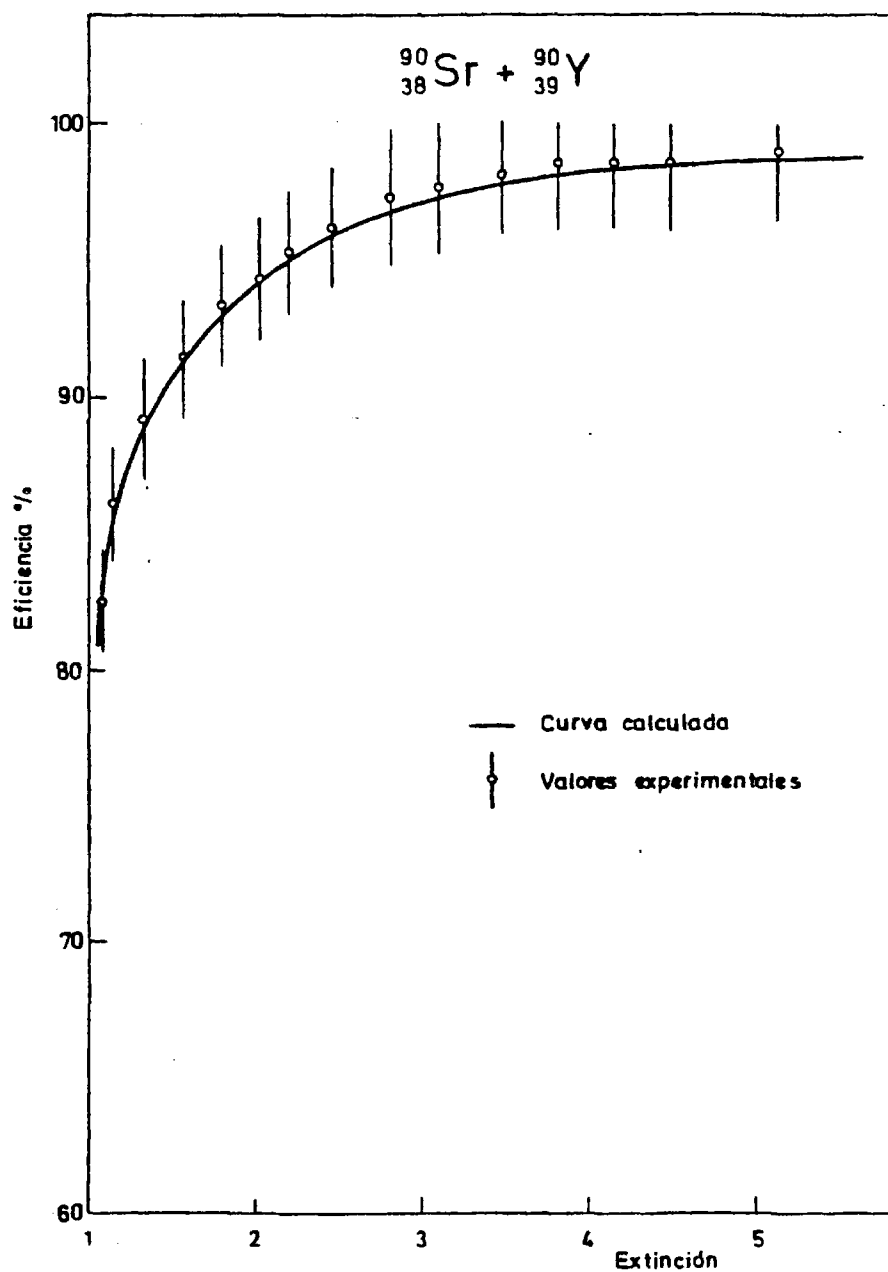


Fig. 67 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

es del orden del 2,5% en la mayor parte de los puntos. A pesar del reducido valor de la incertidumbre, el acuerdo entre las curvas teóricas y los resultados experimentales es extraordinariamente bueno para cualquiera de los 144 quidos de centelleo. La discrepancia del punto correspondiente a $Q = 1,025$, en el centelleador de dioxano, se debe a la incertidumbre de Q .

5.3.2 Ce-144/Pr-144

El ^{144}Ce es un producto de fisión que, con un período de 285 días, decae, por emisión beta, al ^{144}Pr , también emisor beta de 17,3 minutos de período; por lo tanto, en toda muestra de ^{144}Ce que se mida después de tres horas de haber aislado el ^{144}Ce , se puede considerar que la actividad del ^{144}Pr es igual a la del ^{144}Ce . Este fue el caso de todas las muestras calibradas en la presente experiencia.

En las medidas experimentales se partió de una solución calibrada por el L.M.R.I. de Saclay (Francia). La composición química de la solución era de $10\text{ }\mu\text{g/g CeCl}_3$ más $10\text{ }\mu\text{g/g PrCl}_3$, en $\text{HCl } 0,1\text{ N}$, y la concentración de actividad del ^{144}Ce era de $17,26\text{ }\mu\text{Ci/g}$ (con una incertidumbre del 1,8%), equivalente a $6,39 \times 10^5\text{ Bq/g}$. Por resultar excesiva la concentración de actividad, se diluyó con $\text{HCl } 0,1$ y se obtuvo una concentración radiactiva de $0,343 \pm 0,010\text{ }\mu\text{Ci}$, o sea, $(1,269 \pm 0,037) \times 10^4\text{ Bq/g}$.

La incorporación de la solución radiactiva a los distintos centelleadores no permitía una medida segura, ya que la estabilidad de las muestras era poco duradera, especialmente en el caso de muestras extinguidas. Por lo tanto, se procedió a una extracción del ^{144}Ce en fase orgánica.

El cerio en estado trivalente se extrae cuantitativamente a partir de soluciones acuosas que contengan citrato, siempre que el pH esté comprendido entre 9,9 y 10,5. Para ello, la solución de cerio se ajusta el pH óptimo de 10,2 mediante la adición de hidróxido amónico, en solución, hasta que el indicador de fenolftaleína tome color rosa. El cerio se puede extraer con -

una solución de oxina (8-hidroxiquinoleína), al 1%, en cloroformo; una segunda extracción permite obtener cuantitativamente el cerio en la fase orgánica. La adición de un 10% de acetona al extractante permite separar cuantitativamente el cerio en una sola extracción. En este caso hay que incrementar la concentración de oxina del extractante hasta un 3%, para prevenir la solubilidad en la capa acuosa que contiene la acetona.

Con el complejo de ^{144}Ce , en fase orgánica, se prepararon 5 muestras - que se calibraron por comparación espectrométrica gamma con un patrón en solución acuosa. La actividad de la solución en fase orgánica resultó ser de $(2,93 \pm 0,09) \times 10^4$ Bq/g, o sea, $0,792 \pm 0,025 \mu\text{Ci/g}$.

Se prepararon 11 muestras con centelleador de tolueno, 12 con centelleador de dioxano y 13 con centelleador de Insta-Gel. Como extintor se empleó cloroformo.

En el cálculo de la eficiencia de detección se ha supuesto despreciable el efecto de la radiación gamma; hipótesis aceptable, ya que en el caso más desfavorable la contribución gamma a la eficiencia es inferior al 0,5%. Sólo se ha tenido en cuenta la emisión electrónica debida a la desintegración beta y a la conversión interna.

Se ha calculado la eficiencia media de los dos nucleidos, a partir de las eficiencias parciales de cada una de las seis transiciones beta; en cada caso se ha corregido por la conversión interna correspondiente. Como existe un estado isómero de 7,2 minutos de período ($^{144\text{m}}\text{Pr}$), que se desexcita por conversión interna con una intensidad del 0,75%, para obtener la eficiencia total se ha añadido la debida a esta contribución.

En las figuras 68, 69 y 70 se han representado los resultados experimentales y teóricos correspondientes a los tres centelleadores utilizados. La eficiencia experimental se ha obtenido dividiendo la tasa de recuento de cada muestra por el duplo de la tasa de desintegración del ^{144}Ce contenido

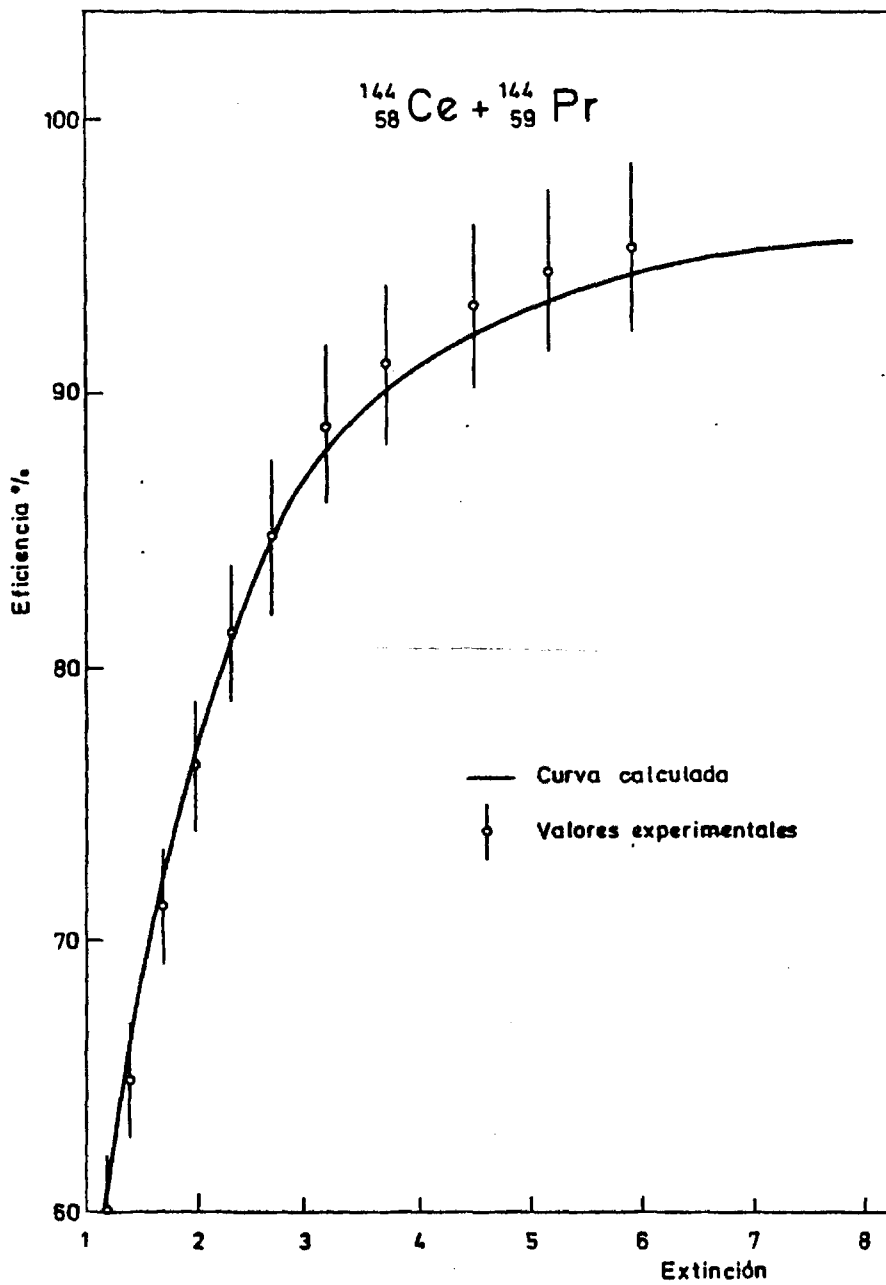


Fig. 68 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

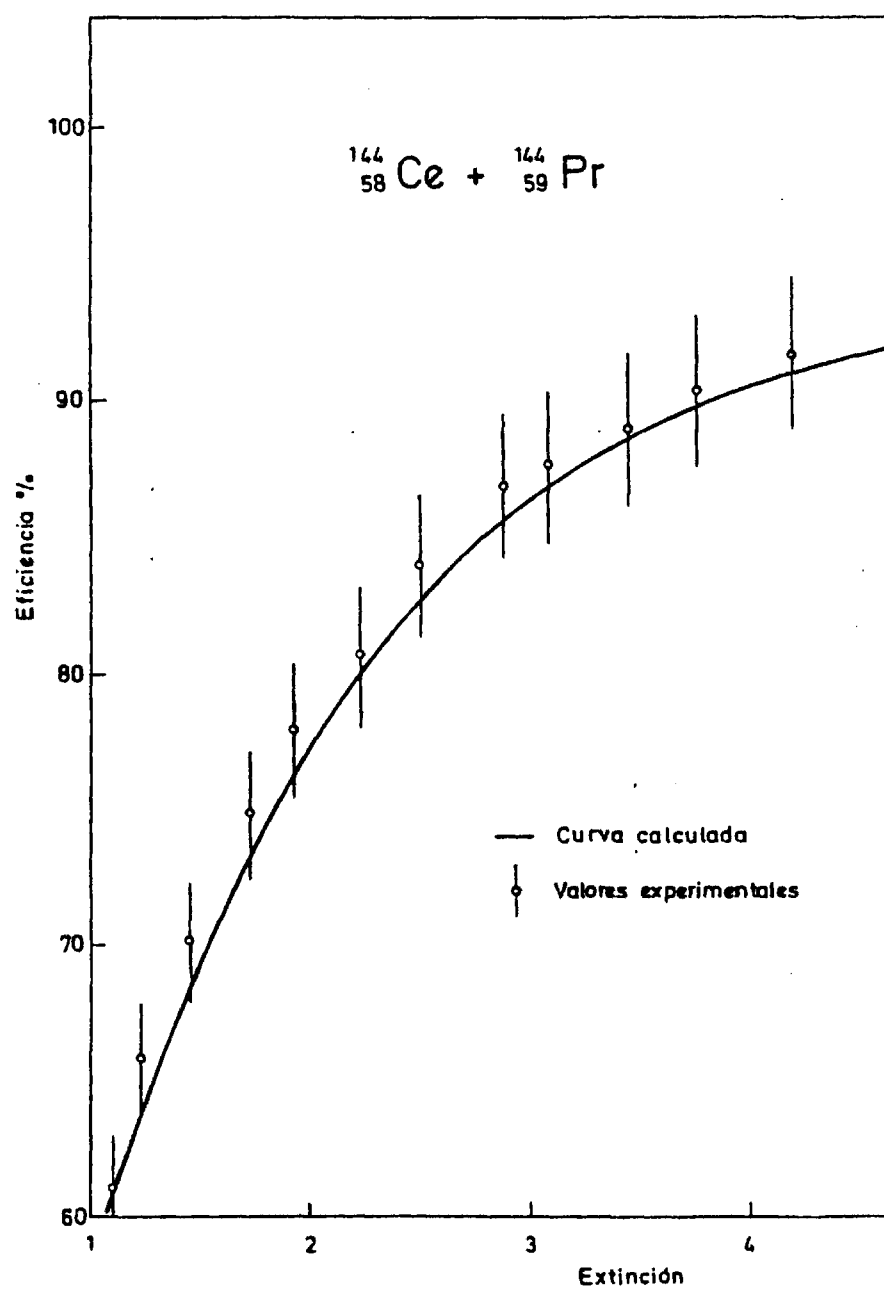


Fig. 69 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

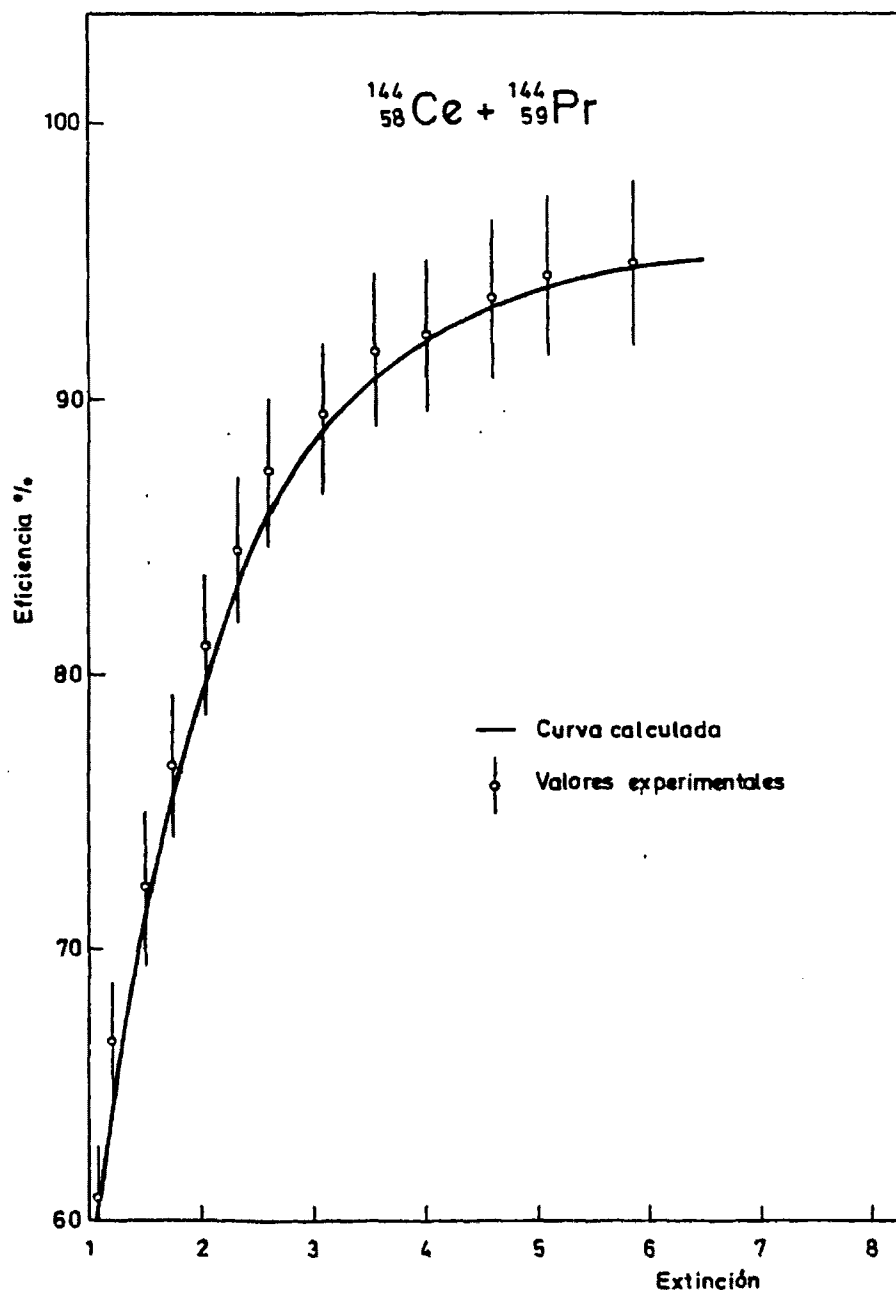


Fig. 70 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

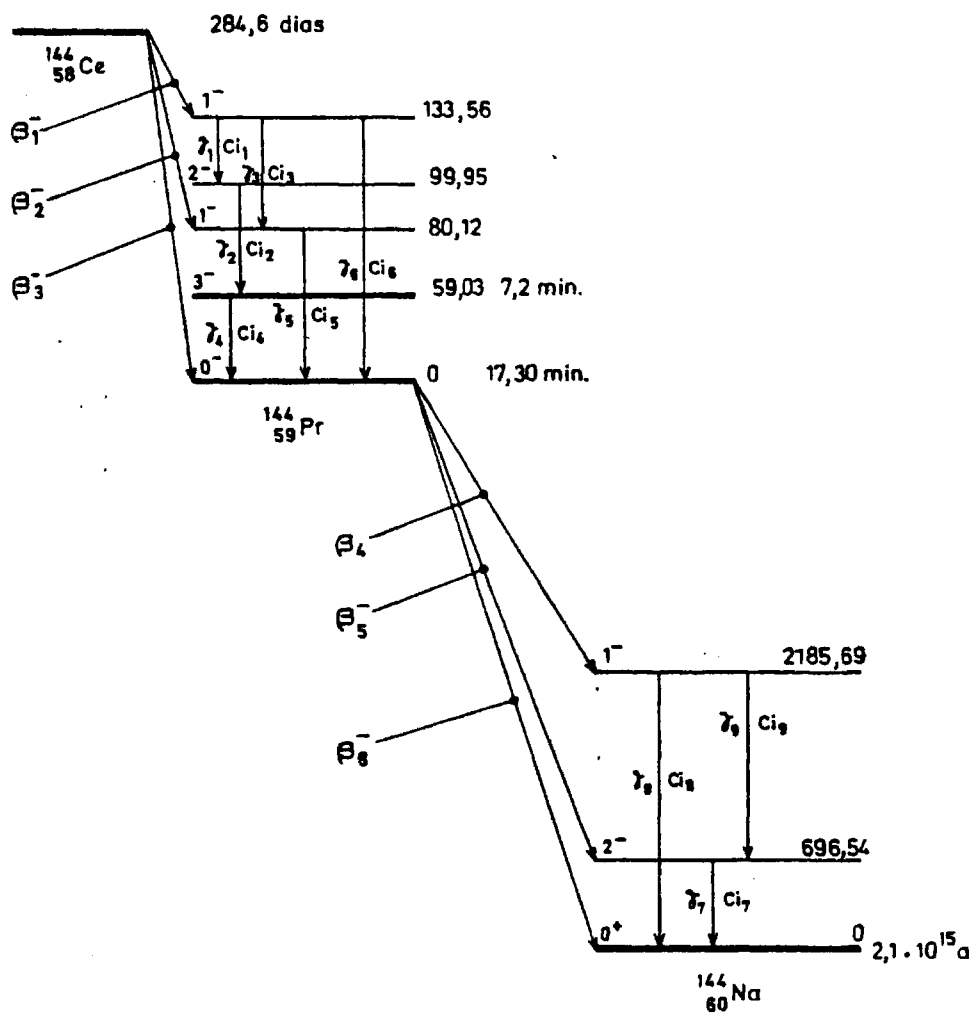


Fig. 71 - Esquema de desintegración del ^{144}Ce - ^{144}Pr .

TABLA IV

EMISION ELECTRONICA DEL ^{144}Ce - ^{144}Pr

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger L	3,0 - 6,8	$10,0 \pm 1,5$
Ci (3K)	$11,42 \pm 0,03$	$0,84 \pm 0,16$
Ci (4K)	$17,04 \pm 0,03$	$0,40 \pm 0,05$
Ci (1L)	26,7 - 27,6	$0,90 \pm 0,08$
Ci (1MN)	32,0 - 33,5	$0,22 \pm 0,02$
Ci (2L)	34,1 - 35,0	$0,74 \pm 0,10$
Ci (5K)	$38,13 \pm 0,03$	$3,35 \pm 0,15$
Ci (2MN)	39,4 - 40,9	$0,18 \pm 0,02$
Ci (3LM)	46,5 - 52,4	$0,14 \pm 0,03$
Ci (4LM)	52,2 - 58,1	$0,75 \pm 0,06$
Ci (5LMN)	73,2 - 80,1	$0,57 \pm 0,05$
Ci (6K)	$91,54 \pm 0,03$	$5,3 \pm 0,2$
Ci (6L)	126,7 - 127,5	$0,75 \pm 0,04$
Ci (6LM)	132,0 - 132,6	$0,20 \pm 0,02$
β_1^-	max: 183 ± 6 med: 50 ± 2	$19,7 \pm 0,7$
β_2^-	max: 236 ± 6 med: $65,8 \pm 2,0$	$4,5 \pm 0,6$
β_3^-	max: 316 ± 6 med: $90,5 \pm 2,0$	$75,8 \pm 0,9$
β_4^-	max: 810 ± 6 med: 267 ± 2	$0,99 \pm 0,04$
β_5^-	max: 2299 ± 6 med: 899 ± 3	$1,05 \pm 0,05$
β_6^-	max: 2996 ± 6 med: 1240 ± 3	$97,96 \pm 0,07$

en la misma. Para el cálculo teórico se ha recurrido al esquema de desintegración de la fig. 71 y a los valores expuestos en la tabla IV (Legrand y col. 1974). La incertidumbre de los valores experimentales es del orden del 3,2% y la de los valores teóricos del 2,8%. El acuerdo entre los resultados teóricos y experimentales es aceptable, dada la complejidad del esquema.

5.4 NUCLEIDOS QUE SE DESINTEGRAN POR CAPTURA ELECTRONICA

Se estudiará en este apartado un grupo de radionucleidos cuya calibración por centelleo líquido presenta serias dificultades. Uno de ellos -el ^{55}Fe - experimenta desintegración por C.E. pura, mientras que todos los demás presentan también desexcitación gamma: unos simple, y otros compleja; -unas veces acompañada de fuerte conversión interna, y otras con conversión -interna prácticamente despreciable.

Los nucleidos seleccionados, tanto para probar la bondad del método de cálculo como las hipótesis establecidas para simplificarlo, lo han sido en función de la disponibilidad de patrones calibrados o de la posibilidad de calibrarlos de forma suficientemente precisa en nuestro laboratorio. Se ha procurado, además, que los pesos atómicos de los nucleidos elegidos cubran el mayor intervalo posible; aunque, intencionadamente, se ha eludido la medida de nucleidos con peso atómico bajo; tal es el caso, por ejemplo, del ^7Be para el que los valores de las constantes atómicas, como el rendimiento de fluorescencia, dependen del estado físicoquímico de la muestra.

Para cada nucleido se han tabulado las constantes características de la captura electrónica, la emisión electrónica y la emisión fotónica. Estos datos unas veces se han extraído directamente de la literatura o de tablas de constantes nucleares y otras se han calculado. Siempre que ha sido posible, a cada valor se le ha incorporado su incertidumbre al nivel del 99,7%.

Los valores del rendimiento de fluorescencia, del número de vacantes,

n_{KL} , del coeficiente de conversión total, α_t , de la relación K/L y del coeficiente de conversión α_K , se han incluido en el texto del trabajo.

5.4.1 Hierro-55

El hierro-55 es un nucleido que se desintegra por captura electrónica pura y es el único, de este tipo, que se ha medido para comprobar el método de determinación de la eficiencia a partir del factor de mérito.

Como muestra patrón se ha recurrido a una solución calibrada por el L. M.R.I. de Francia. La composición química de la solución era $10 \mu\text{g/g}$ de FeCl_3 en HCl $0,1 \text{ N}$ y la concentración de actividad de $22,64 \pm 0,93 \mu\text{Ci/g}$, equivalente a $(8,38 \pm 0,34) \times 10^5 \text{ Bq/g}$. Una dilución con HCl $0,1 \text{ N}$ permitió obtener una concentración radiactiva de $0,389 \pm 0,018 \mu\text{Ci/g}$, es decir, $(1,44 \pm 0,07) \times 10^4 \text{ Bq/g}$.

Las doce muestras con centelleador de dioxano, así como las veinte con centelleador de Insta-Gel, se prepararon incorporando directamente al centelleador del orden de 200 mg de la solución diluida. Las quince muestras de tolueno se obtuvieron incorporando del orden de 220 mg de solución radiactiva -por muestra- a 2 cm^3 de centelleador de tolueno. También se recurrió -en esta experiencia a la adición de las cantidades adecuadas de tetracloruro de carbono para forzar la extinción.

Una fuente de error que hay que controlar es la posible adsorción de la solución calibrada en la ampolla de transporte. Dada la dificultad de recalibrar el ^{55}Fe , se efectuó -una vez transvasada la solución radiactiva al correspondiente "picnómetro"- una prueba indirecta que consistía en añadir a la ampolla HCl 1 N hasta llenarla. Después de permanecer durante 24 horas a 22°C , se procedió a medir la concentración de actividad del líquido, que resultó ser inferior a $0,03 \text{ Ci/cm}^3$; es decir, que la pérdida de actividad por adsorción, si se produjo, fue inferior al $0,3\%$.

TABLA V

⁵⁵Fe
26

(a) TRANSICION POR CAPTURA ELECTRONICA

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P _K	P _L	P _M
232	100	6,0	Permitida	0,881 ± 0,008	0,103 ± 0,008	0,016 ± 0,002

(b) EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	4,95 - 5,21	49,1
KLX	5,69 - 5,90	10,6
KXY	6,37 - 6,53	0,8
Auger L	0,47 - 0,76	144 ± 7

(c) EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
X _L	0,56 - 0,72	0,47 ± 0,06
X _{α₂}	5,88765	16,2
X _{α₁}	5,89875	8,1
X _{β_{1,2}}	6,49045	3,3
X _{β₃}	6,5352	0,0002

El valor medio de las eficiencias, así como las incertidumbres, se ha representado en las figuras 72, 73 y 74 que corresponden, respectivamente, al centelleador de tolueno, al de dioxano y al de Insta-Gel.

En la tabla V se han reseñado los valores y las incertidumbres -en la mayor parte de los casos- de las distintas magnitudes empleadas en el cálculo de la eficiencia.

En las mismas tablas, los valores de las probabilidades de captura electrónica (P_K , P_L y P_M), así como sus incertidumbres, se han calculado a partir de las relaciones $CE(L)/CE(K)$ y $CE(M)/CE(L)$, obtenidas experimentalmente por Manduchi y col. 1962, Pengra y col. 1972 y Moler y col. 1963. La intensidad de la transición por captura electrónica y el $\log ft$ se han extraído del esquema de desintegración publicado en las tablas de Lederer y col. 1978 y la energía de la transición del trabajo de Bambynek y col. 1977.

Los datos relacionados con la emisión de electrones Auger se exponen - en la tabla V(b). Las energías del grupo KLL se han sacado del trabajo de Shirley 1973, mientras que las de los grupos KLX y KXY, así como las de los electrones Auger L, las hemos calculado directamente a partir de las tablas de Bearden y col. 1967. Las intensidades absolutas de los electrones Auger K y L las hemos calculado a partir de las constantes atómicas del Mn: coeficiente de fluorescencia K, $\omega_K = 0,313 \pm 0,009$; valor medio del coeficiente de fluorescencia L, $\bar{\omega}_L = (3,25 \pm 0,30) \times 10^{-3}$; y número de vacantes L, creadas en el relleno de vacantes K, $n_{KL} = 1,52 \pm 0,07$. Todos estos valores se han seleccionado del trabajo de Bambynek y col. 1972. Las intensidades absolutas de los distintos grupos de electrones Auger K se han computado a partir de las relaciones KLX/KLL y KXY/KLL, tomadas de las tablas de Venugopala Rao y col. 1972 y de la intensidad absoluta de la Emisión Auger K, obtenida previamente.

Por último, en la tabla V(c) se expone la emisión fotónica subsiguiente a la C.E. Las energías se han sacado de las tablas de Bearden 1967; las

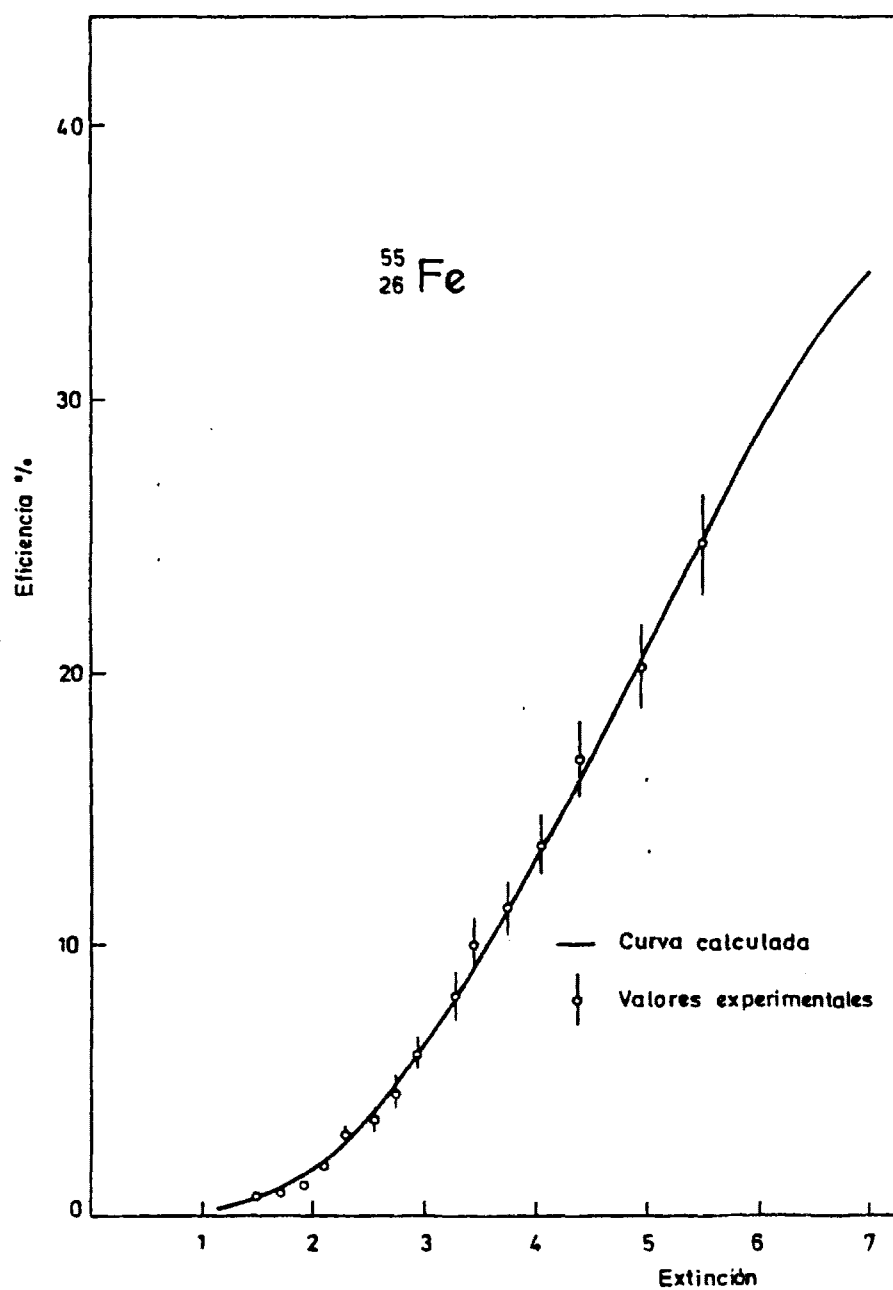


Fig. 72 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

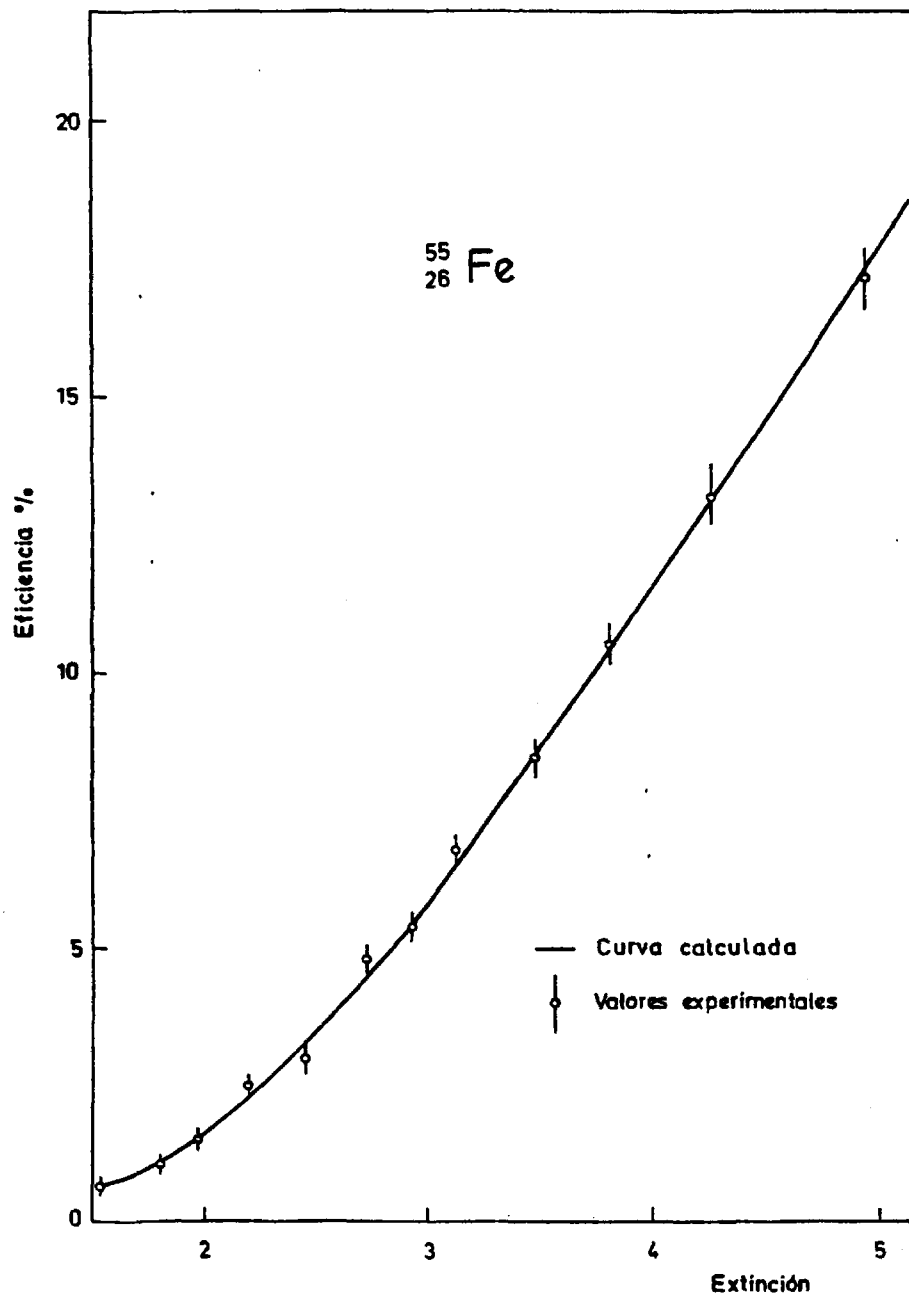


Fig. 73 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

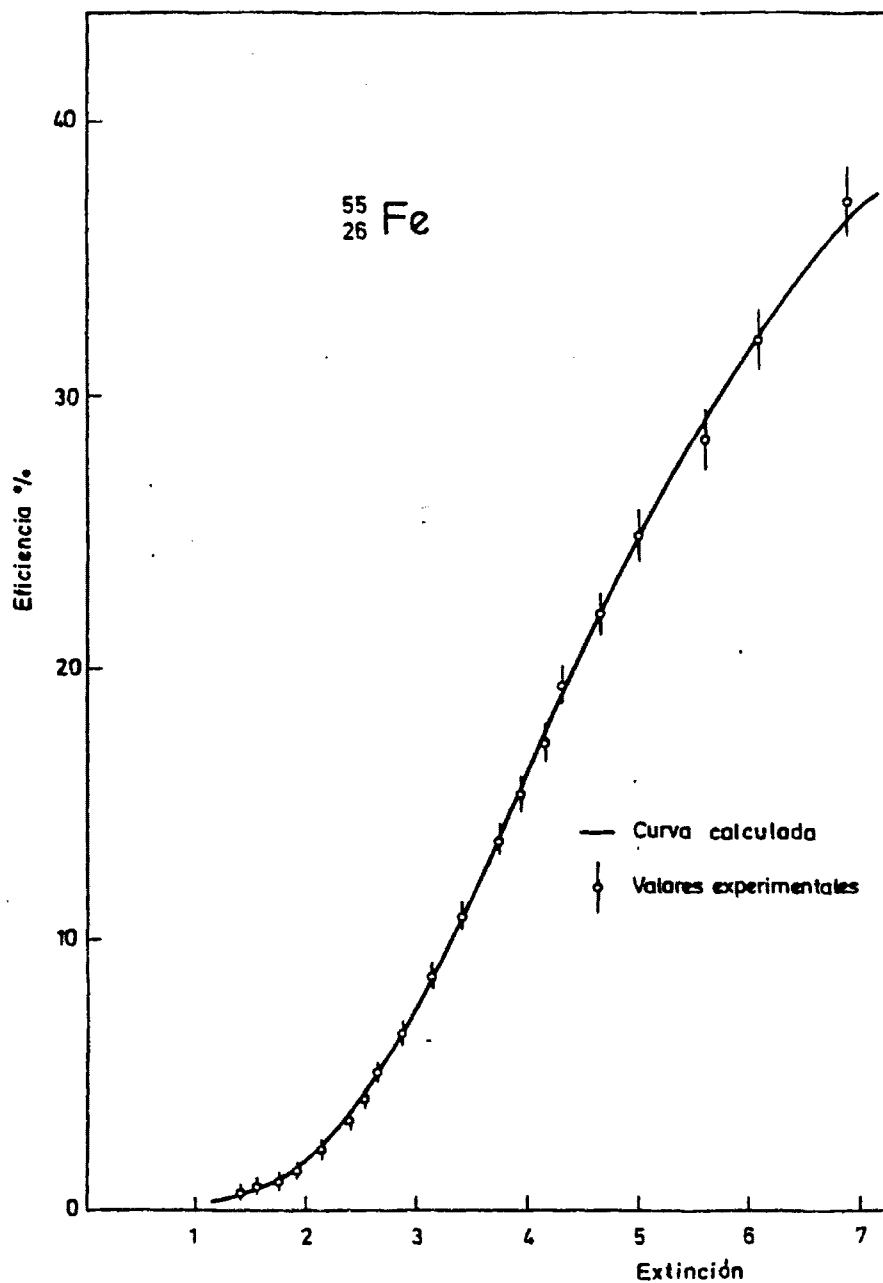


Fig. 74 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

intensidades absolutas K y L las hemos calculado a partir de las constantes atómicas mencionadas antes. Para calcular las intensidades absolutas de cada una de las transiciones X, se ha hecho uso de las relaciones entre las distintas transiciones presentadas en las tablas de Salem y col. 1974.

La incertidumbre en las curvas teóricas de eficiencia es inferior al 6% en las situaciones más desfavorables. Debido a las simplificaciones introducidas en el modelo de cálculo (apartado 3.3), no resulta factible el cómputo riguroso de la incertidumbre; por lo tanto, se ha calculado una cota de incertidumbre previsible a partir de las incertidumbres de los datos.

La concordancia entre los resultados experimentales y teóricos, para los tres tipos de centelleadores ensayados, pone de manifiesto que la simplificación introducida en el modelo de cálculo es aceptable, al menos para el ^{55}Fe y para el nivel de incertidumbre de los datos experimentales. Hay que señalar que este nucleido es de calibración difícil y sólo realizable en laboratorios altamente especializados; además, las mejores incertidumbres obtenidas hasta la fecha son del orden del 4%.

5.4.2 Manganeso 54

El ^{54}Mn se desintegra por captura electrónica y pasa al estado excitado de 835 keV, perteneciente al ^{54}Cr . La desexcitación de este nivel, con una vida media de 8,2 ps, se produce mediante la emisión de un fotón gamma de 835 keV en el 100% de los casos; por consiguiente, a efectos de detección, la captura electrónica y la emisión del fotón son procesos simultáneos.

Se tomó como muestra patrón una solución calibrada por el L.M.R.I. de Francia. La composición química de esta solución era de $10\mu\text{g}$ de MnCl_2 por gramo de solución en HCl 0,1 N. Y la concentración radiactiva debía ser, según el certificado de calibración, de $7,626 \times 10^5$ Bq/g, o sea, $20,61\mu\text{Ci/g}$,

con una incertidumbre relativa del 1,0%.

Al igual que con los otros patrones, a excepción del ^{55}Fe -como se ha mencionado en el apartado anterior- se procedió a recalibrar la solución. - Se aplicó un método espectrométrico para comprobar la pureza y determinar - la actividad de la solución que resultó ser de $4,04 \times 10^4$ Bq/g, es decir, - el 5,3% de la concentración original. Como toda la solución se había transvasado a un picnómetro, se midió la ampolla vacía, que había contenido la - solución, y se encontró que la mayor parte de la actividad se encontraba en las paredes interiores de la ampolla.

Para recuperar al menos el ^{54}Mn , ya que la calibración inicial se había perdido, se procedió a rellenar la ampolla con 10 cm^3 de ácido clorhídrico 1 N y al cabo de 24 horas se disponía de una solución radiactiva estable. La calibración de ésta, por espectrometría gamma, con un detector de - Ge(Li) y utilizando como patrones una serie de fuentes gamma puntuales calibradas en Amersham (Inglaterra), dió como concentración de actividad $1,92 \times 10^5$ Bq/g, equivalentes a $5,18 \mu\text{Ci/g}$, con una incertidumbre relativa del 3,8%.

Las 16 muestras con centelleador de tolueno, así como las 15 con centelleador de Insta-Gel, se prepararon incorporando del orden de 100 mg de solución radiactiva. La aplicación del mismo método al centelleador de dioxano dió como resultado la aparición de un color verde intenso en las muestras. Como se comprobó que el color se debía principalmente a la acción del ácido sobre el dimetil-POPOP, se procedió a preparar un nuevo centelleador sin este componente, y con él se obtuvieron las 16 muestras usadas en la experiencia. Hay que señalar que todas las muestras, independientemente del - tipo de centelleador, mostraban una ligera tonalidad verdosa.

En las figuras 75, 76 y 77 se han representado los valores de las eficiencias experimentales y las incertidumbres correspondientes; estas últimas, como se comentará a continuación, se han sobreestimado. Puesto que la incertidumbre total de los patrones gamma, calibrados por Amersham, era del

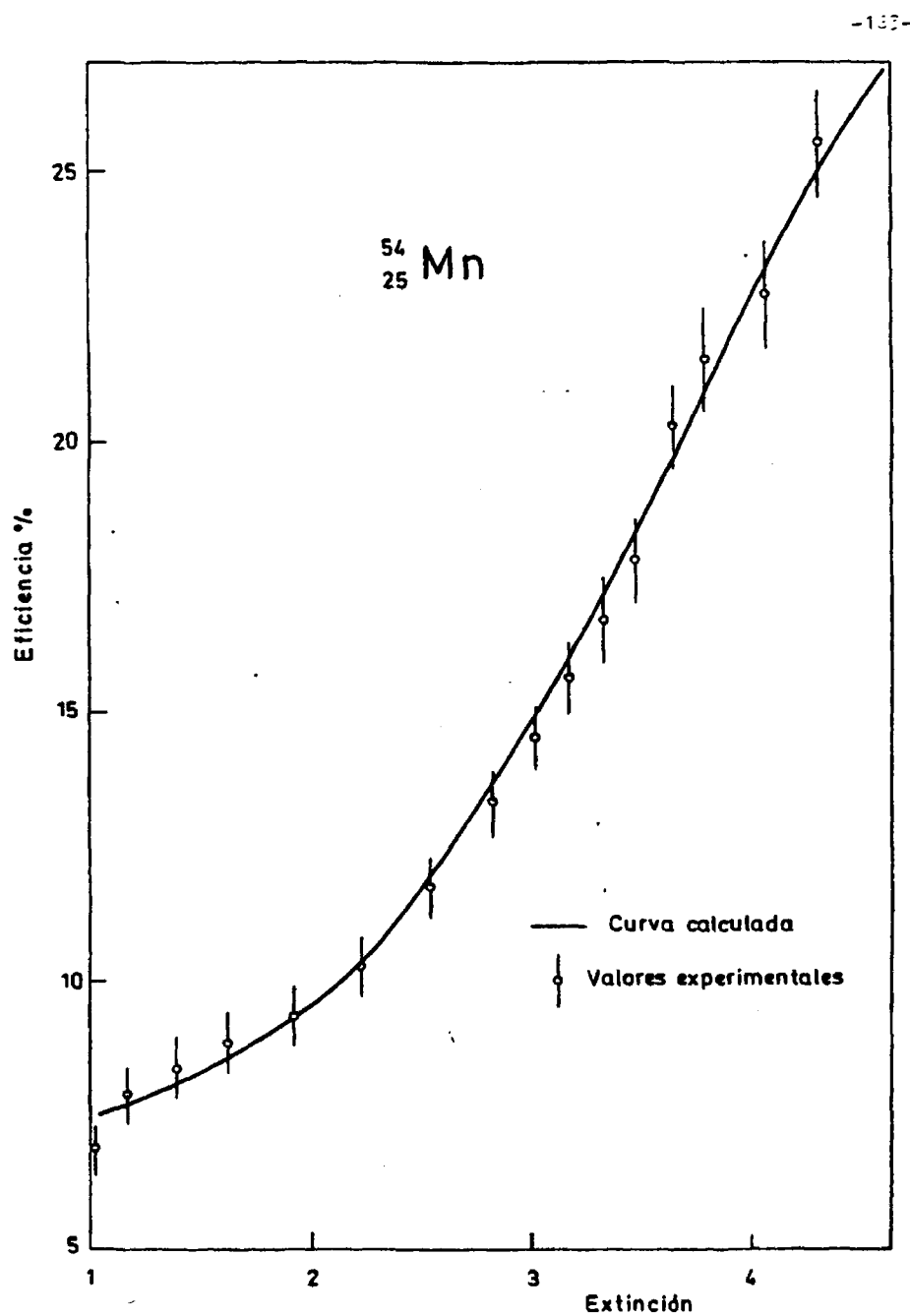


Fig. 75 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

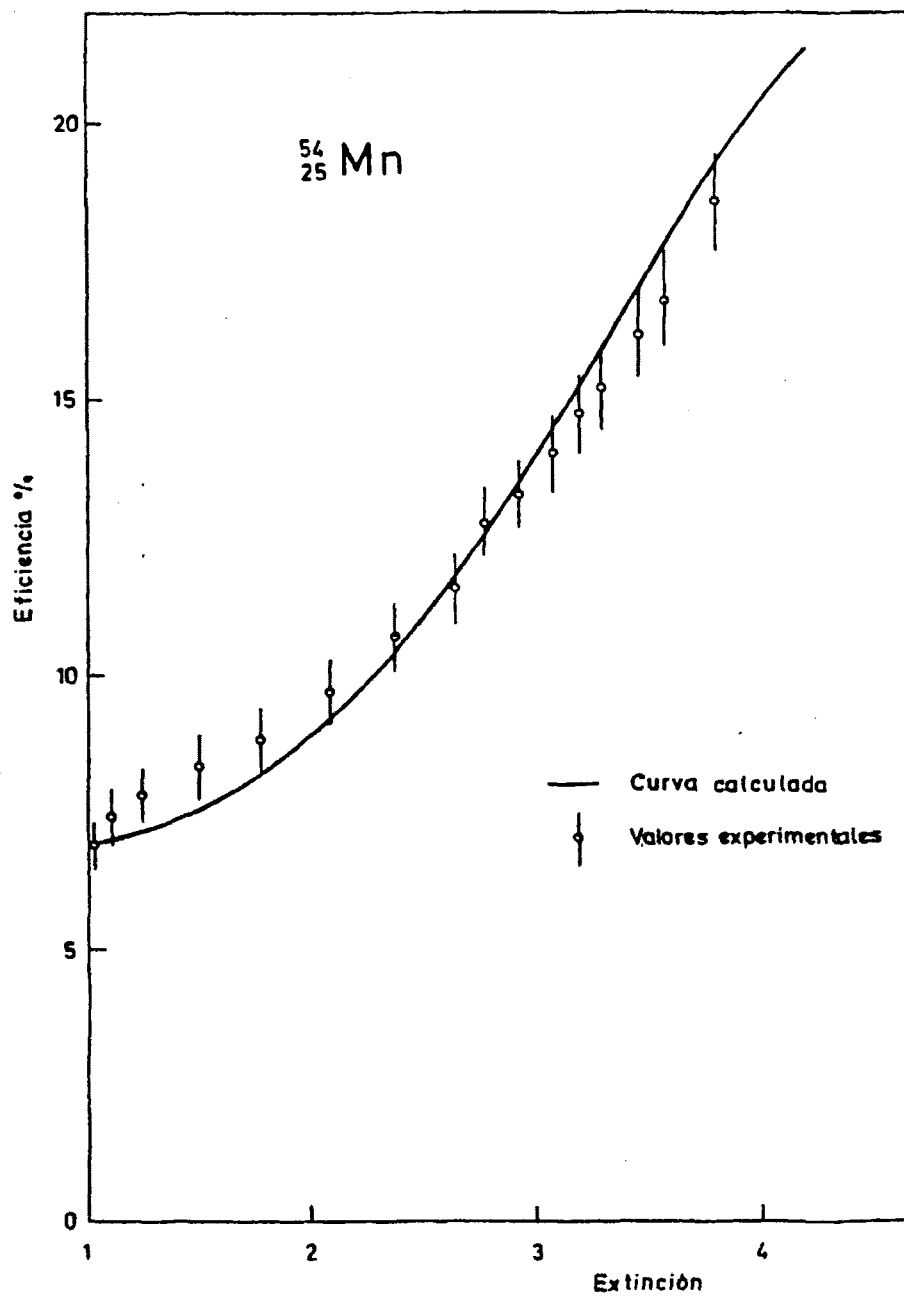


Fig. 76 - Eficiencia correspondiente al ventelizador de dioxano.

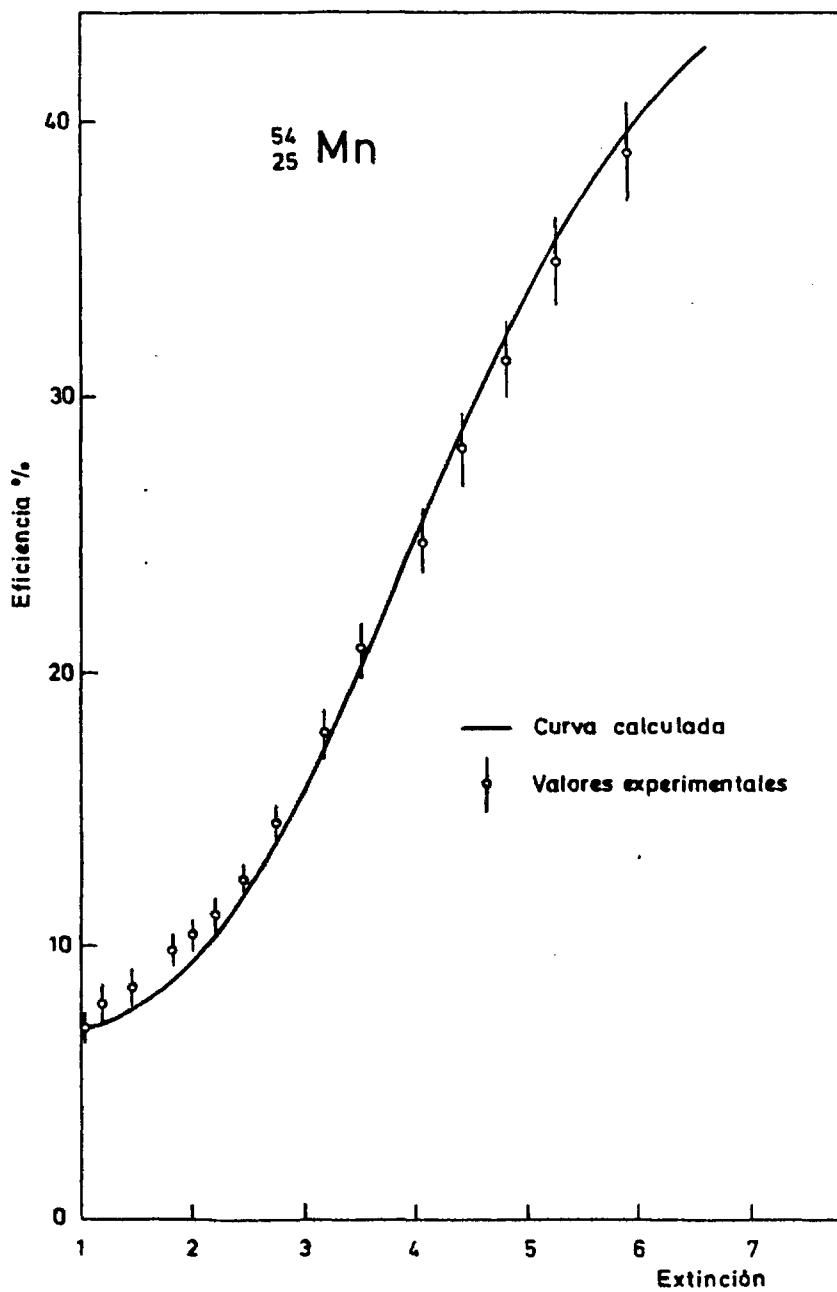


Fig. 77 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

3% y no se conocían los valores sistemáticos y aleatorios de esta incertidumbre, se consideró el 3% como sistemático. La incertidumbre aleatoria en la determinación del área del fotopico, resultó ser del orden del 0,3% y la sistemática inferior al 0,5%. Así pues, la incertidumbre total de la solución calibrada en nuestro laboratorio se tomó igual al 3,8% y la incertidumbre sobre la eficiencia, en las medidas por centelleo líquido, osciló al rededor del 4,3%.

Los datos de la tabla VI han sido calculados por nosotros y están de acuerdo con los de Legrand y col. 1974.

En el cálculo de la eficiencia teórica se ha admitido la hipótesis de que la tasa de recuento debida a la radiación gamma no varía con la extinción. Esta hipótesis nos evita tener que trabajar con el espectro de electrones Compton que, evidentemente, complicaría bastante los cálculos.

A fin de comprobar experimentalmente el grado de validez de la hipótesis mencionada se ha llenado con la solución radiactiva un tubo capilar, de vidrio, de 1,0 mm de diámetro interior y 0,35 mm de espesor. Se prepararon 6 frascos con 15 cm³ de centelleador de tolueno cada uno y cantidades crecientes de tetracloruro de carbono como sustancia extintora. La inserción del capilar en el centro del frasco permitió estudiar la variación de la eficiencia, en función de la extinción, de la radiación electromagnética exclusivamente, ya que el espesor de la pared del capilar era suficiente para impedir la interacción de los electrones Auger con el centelleador. A fin de poder determinar la eficacia gamma, se conectó el espectrómetro de centelleo líquido a un analizador multicanal Tracor Northern modelo TN-1705 y del espectro obtenido se determinó el área del espectro Compton. La actividad gamma de la varilla radiactiva se obtuvo mediante el método de Heath - 1964, suponiendo que la fuente era lineal y despreciando la absorción gamma en el vidrio. La determinación de la relación entre las eficiencias gamma de una muestra lineal y una muestra uniformemente distribuida en el volumen del centelleador se efectuó teóricamente mediante el método de Takine y col.

⁵⁴Mn
25

TRANSICION POR C.E.

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P _K	P _L	P _M
540 ± 11	100	6,1	Permitida	0,894 ± 0,003	0,093 ± 0,003	0,013 ± 0,001

EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	4,55 - 4,79	52,0
KLX	5,22 - 5,41	11,2
KXY	5,84 - 5,98	0,9
Auger L	0,43 - 0,69	147 ± 7

EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
X _L	0,50 - 0,65	0,44 ± 0,05
X _{α2}	5,40551	14,8
X _{α1}	5,41472	7,4
X _{β1.3}	5,94671	3
γ	834,848 ± 0,017	99,978 ± 0,002

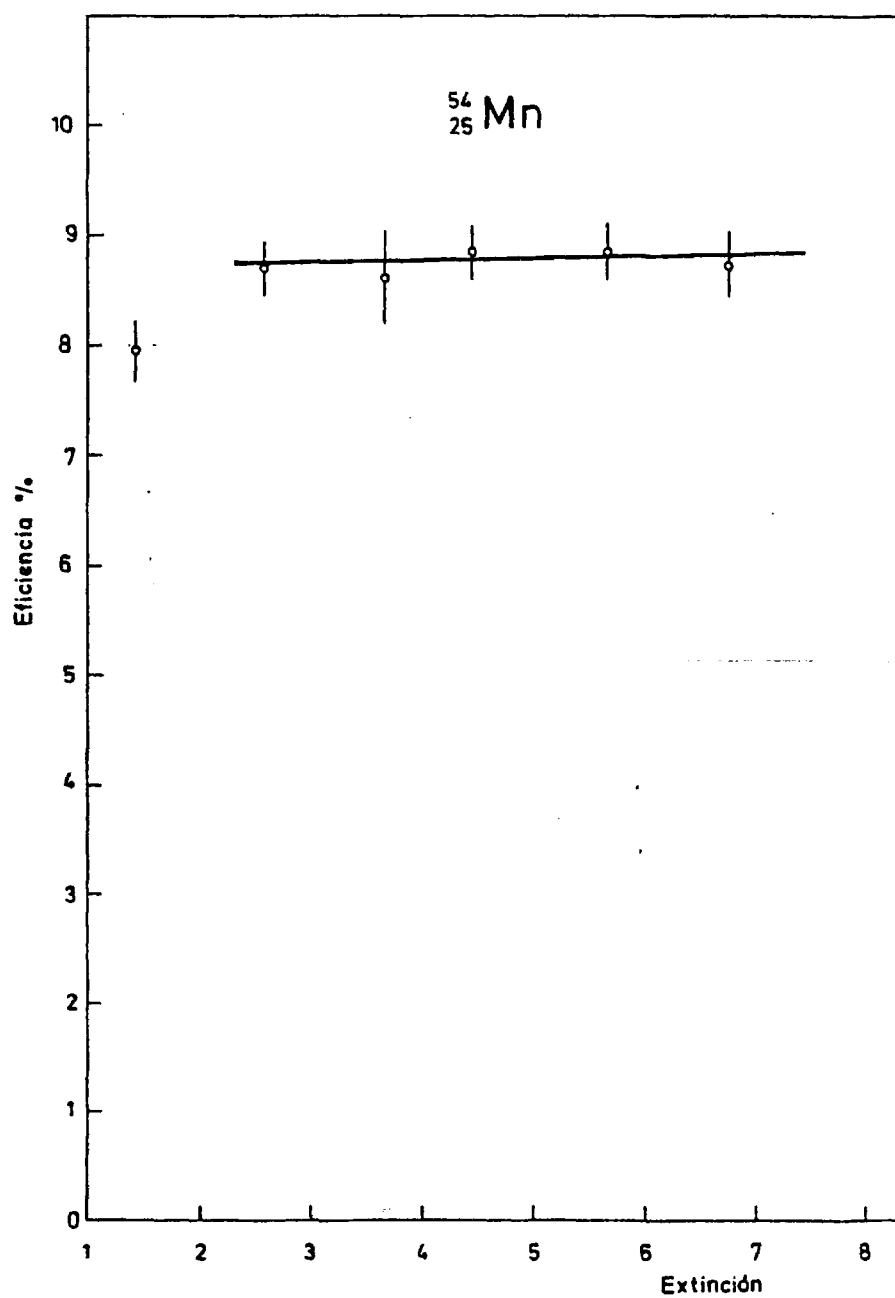


Fig. 78 - Variación de la eficiencia gamma con la extinción.

1979, que es una ampliación del publicado por Gibson y col. 1972.

En la fig. 78 se han dibujado los valores experimentales obtenidos en la experiencia antes mencionada. Se puede afirmar que la hipótesis de la constancia de la eficiencia gamma es válida en un $\pm 6\%$ en el intervalo de extinciones comprendido entre $Q = 2$ y $Q = 7$. Sin embargo, para un valor del parámetro de extinción $Q \leq 1,5$, la disminución en la eficiencia gamma es del orden del 10%. La cota de incertidumbre en la eficiencia de detección resultó inferior al 6% en todo el intervalo de extinción.

Como se deduce de las figuras 75, 76 y 77, la concordancia entre los valores teóricos y experimentales es, en buena parte del intervalo de extinción ($Q > 2,5$), excelente; pero en el intervalo de extinción $1 < Q < 2,5$ la eficiencia experimental es algo mayor que la calculada. La explicación más plausible es que, para un determinado valor del parámetro de extinción, la reducción en la amplitud de los impulsos es mayor para la extinción química que para la extinción por color. Y este fenómeno es más sensible cuando mayor es la energía de las partículas (ten Haaf y col. 1977). Es interesante señalar que hasta la fecha sólo algunas discrepancias entre ambas extinciones se han conseguido explicar cualitativamente, desde el punto de vista teórico.

5.4.3 Estroncio-85

Según las tablas de Lederer y col. 1978, el ^{85}Sr se desintegra en el 99,99% de los casos por captura electrónica y pasa a un estado excitado del ^{85}Rb . La desexcitación de este estado, que tiene una vida media de $1,01\mu\text{s}$, da lugar a la emisión de fotones gamma de 514 keV. Puesto que el tiempo de resolución del sistema de medida es de $35\mu\text{s}$, se puede considerar que la captura electrónica y la emisión gamma son procesos simultáneos, a efectos del recuento.

Para la determinación experimental de la eficiencia se partió de una -

TAHLA VII

$^{85}_{38}\text{Sr}$

(a) TRANSICION POR C.E.

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P_K	P_L	P_M
546 ± 30	99,99	6,1	Permitida	$0,873 \pm 0,002$	$0,106 \pm 0,002$	$0,021 \pm 0,001$

(b) EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	10,99 - 11,51	20,8
KLX	12,81 - 13,38	7,3
KXY	14,56 - 15,17	0,8
Auger L	1,16 - 2,04	$107,8 \pm 6,0$
Conversion K	$498,79 \pm 0,02$	$0,63 \pm 0,03$
Conversion LM	511,92-513,88	$0,07 \pm 0,01$

(c) EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
X_L	1,48 - 2,05	$2,31 \pm 0,22$
$XK\alpha_2$	13,3358	16,8
$XK\alpha_1$	13,3953	32,9
$XK\beta_1$	14,9517	2,7
$XK\beta_2$	14,9613	5,2
$XK\beta_3$	15,1854	0,8
γ	$513,99 \pm 0,02$	$99,27 \pm 0,04$

solución procedente del Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra). La solución estaba en forma de SrCl en solución acuosa con aproximadamente $0,5 \mu\text{g}$ de Sr/cm^3 . La concentración radiactiva se obtuvo por espectrometría gamma, previa calibración de un detector de $\text{Ge}(\text{Li})$ con muestras puntuales calibradas por el Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra). La concentración de actividad resultó ser de $(2,64 \pm 0,13) \times 10^4 \text{ Bq/g}$, o sea, $0,713 \pm 0,036 \mu\text{Ci/g}$.

Se prepararon 19 muestras con centelleador de tolueno, para lo cual se incorporaron del orden de 50 mg de solución radiactiva, $0,05 \text{ cm}^3$ de HCl $0,1 \text{ N}$, 3 cm^3 de etanol y 12 cm^3 de centelleador de tolueno. Las 15 muestras con centelleador de dioxano, así como las 18 con centelleador de Insta-Gel, se prepararon adicionando $0,1 \text{ cm}^3$ de HCl $0,1 \text{ N}$ a 100 mg de solución radiactiva a los que se les añadió 15 cm^3 del centelleador correspondiente.

En la tabla VII se detallan las distintas constantes atómicas y nucleares necesarias para el cálculo teórico de la eficiencia. Los valores de la tabla VII(a) se han tomado del trabajo de Legrand y col. 1974. Las energías de los electrones Auger KLL se han sacado de las tablas de Shirley 1973 y las energías de las demás transiciones Auger (KLX, KXY y L), por cálculo, del trabajo de Bearden y col. 1967. Las intensidades absolutas se han calculado a partir de las constantes atómicas del Rb: $\omega_K = 0,669 \pm 0,08$, $\bar{\omega}_L = 0,021 \pm 0,001$ y $n_{KL} = 1,14 \pm 0,05$, extraídas del trabajo de Bambynek y col. 1972 y Mc Guire 1972. Las energías de los electrones de conversión se han calculado a partir de la energía gamma y de las energías de ligadura K y L del Rb. Las intensidades de las líneas de conversión se han obtenido a partir de los coeficientes de conversión extraídos de las tablas de Lederer y col. 1978.

Las energías de los distintos rayos X se han sacado de las tablas de Bearden 1967, mientras que las intensidades absolutas se han calculado con la ayuda de los datos atómicos del Rb. Las intensidades relativas de las diferentes transiciones X se han seleccionado de las tablas de Salem y col. -

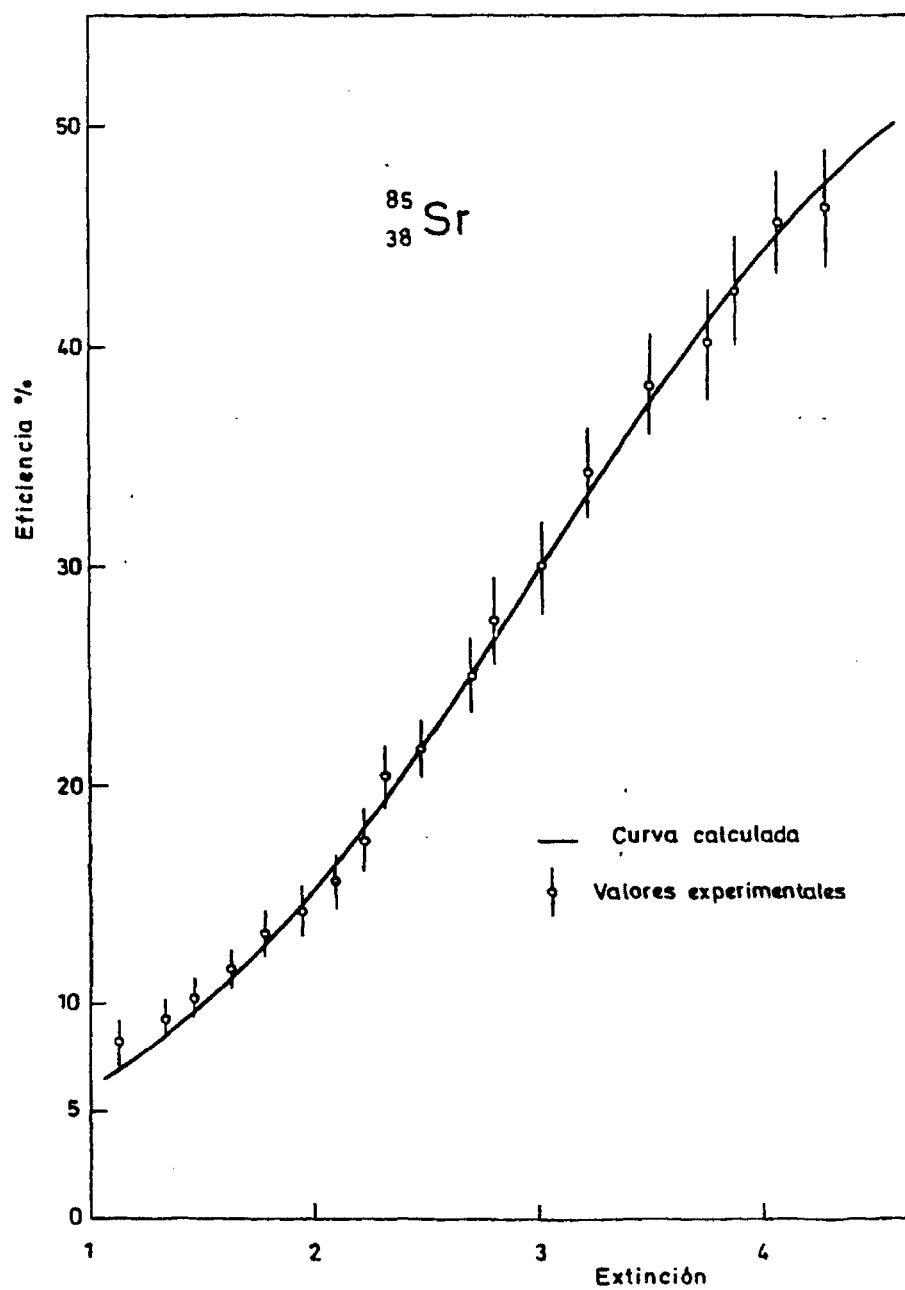


Fig. 79 - Eficiencia correspondiente al centalleador de tolueno.

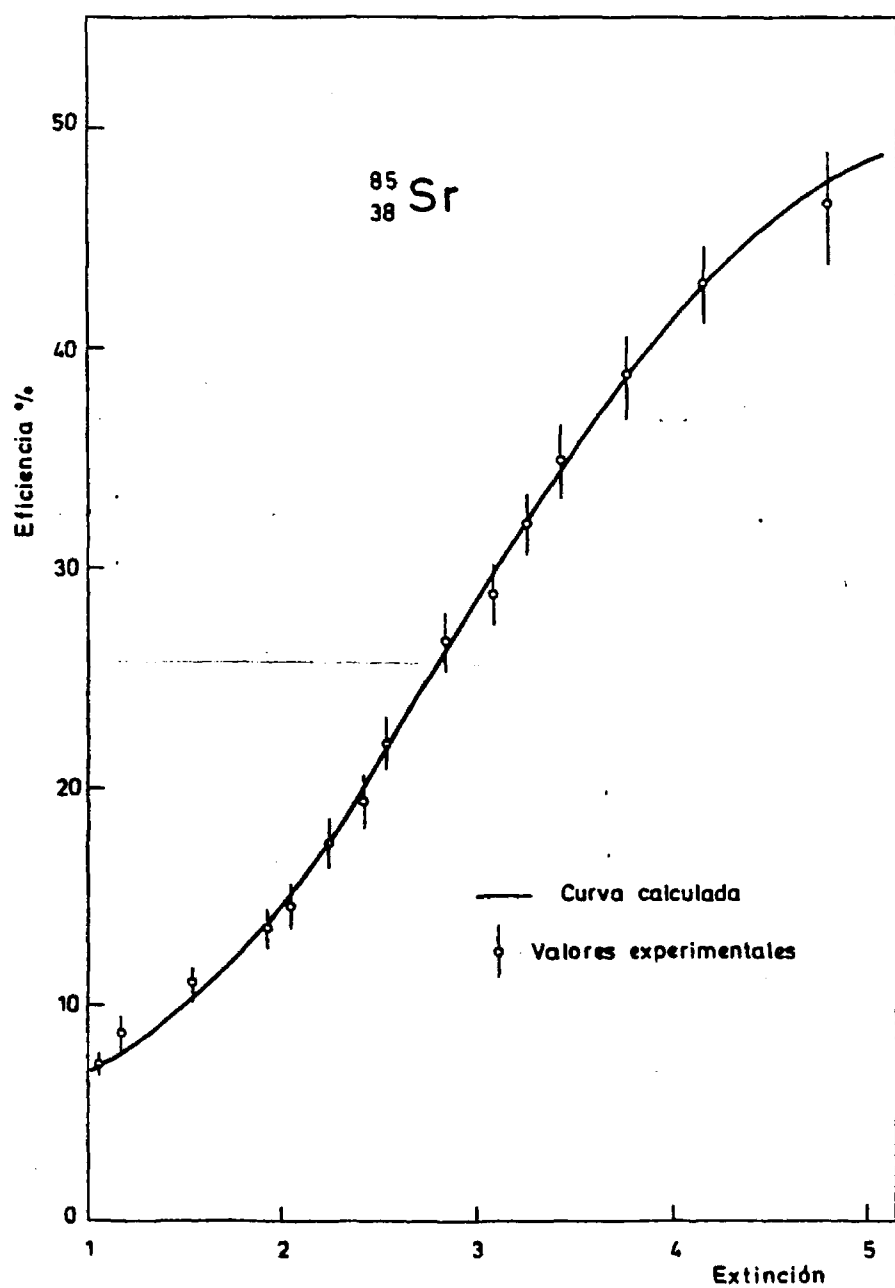


Fig. 80 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

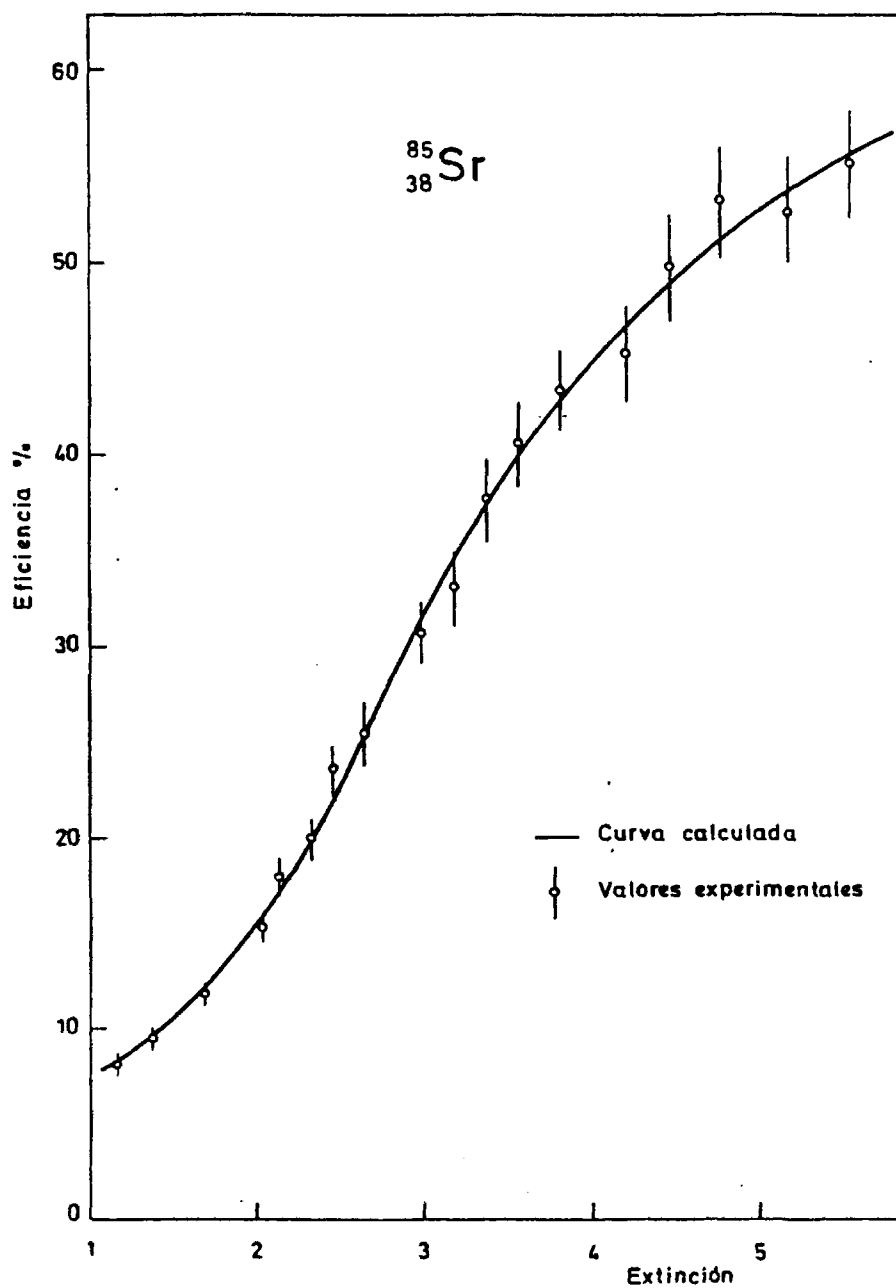


Fig. 81 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

1974. El valor adoptado para la energía de los fotones gamma es el valor medio ponderado de los publicados por Black y col. 1967, Torti y col. 1972, - Legrand y col. 1968 y Helmer y col. 1971; y la intensidad absoluta es la diferencia entre la intensidad de la captura electrónica al nivel excitado de 514 keV del ^{85}Rb y la intensidad de la conversión interna de la transición gamma.

A partir de todos estos datos, la cota de incertidumbre en la eficiencia teórica es inferior al 8% en todo el intervalo de extinción.

En el estudio de la eficiencia experimental se ha comprobado que la eficiencia de detección correspondiente a la emisión gamma es independiente del grado de extinción de la muestra para $Q > 2$. Se ha seguido el mismo método que con el ^{54}Mn , pero en este caso ha sido necesario sustraer al espectro Compton el pico debido a los rayos X.

En las figuras 79, 80 y 81 se han representado los valores experimentales y sus incertidumbres, que son del orden del 6%. La concordancia entre los resultados experimentales y teóricos es aceptable dentro de los errores previstos.

5.4.4 Yodo 125

El ^{125}I se desintegra exclusivamente por captura electrónica al nivel excitado de 35 keV del ^{125}Te . Hasta la fecha no se ha puesto en evidencia ninguna transición por captura electrónica al nivel fundamental del ^{125}Te . Como el nivel excitado de 35 keV tiene una vida media de $1,47 \times 10^{-9}$ s, la captura electrónica y la desexcitación son procesos simultáneos, a efectos de detección.

Se calibró una solución radiactiva de NaI en NaOH 0,1 N, mediante espectrometría gamma, y se obtuvo una concentración radiactiva de $(4,79 \pm 0,19) \times 10^4$ Bq/g, equivalentes a $1,295 \pm 0,052 \mu\text{Ci/g}$. Al mismo tiempo se

TABLA VIII

$^{125}_{53}\text{I}$

(a) TRANSICION POR C.E.

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P_K	P_L	P_{MN}
143 ± 2	100	4,8	Permitida	$0,797 \pm 0,003$	$0,162 \pm 0,010$	$0,040 \pm 0,003$

(b) EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	21,81 - 23,91	13,2
KLX	25,87 - 27,47	6,0
KXY	29,80 - 31,81	0,8
Auger L	2,33 - 4,93	161 ± 10
Conversión K	$3,67 \pm 0,03$	$80,5 \pm 1,0$
Conversión L	30,5 - 31,1	$10,7 \pm 0,4$
Conversión MN	34,5 - 35,5	$2,4 \pm 0,1$

(c) EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
XK α	27,2 - 27,5	114,4
XK β	31,0 - 31,8	25,8
XL	3,3 - 4,9	$12,7 \pm 3,2$
γ	$35,48 \pm 0,03$	$6,7 \pm 0,1$

comprobó que el ^{126}I -impureza posible en la solución-, si existía, se encontraba en concentraciones inferiores a 710 Bq/g.

A partir de la solución radiactiva se prepararon 18 muestras con centelleador de tolueno y un centímetro cúbico de etanol absoluto; 15, con centelleador de dioxano y 18 con centelleador de Insta-Gel. La solución radiactiva se adicionó gravimétricamente y se procuró que el peso fuera del orden de 80 mg.

En la tabla VIII(a) se muestran los valores de las magnitudes dependientes de la captura electrónica. Las probabilidades de captura se han seleccionado de los trabajos de Leuz y col. 1964 y de Smith y col. 1966; los demás valores se han extraído de las tablas de Lederer y col. 1978.

Las energías e intensidades Auger de la tabla VIII(b) se han obtenido de la misma forma que se ha indicado en los apartados anteriores. Las energías de los electrones de conversión se han calculado a partir de E_γ y de los datos de las tablas de Bearden y col. 1967; y en las intensidades, de los valores del coeficiente de conversión ω_K publicados por Karttunen y col. 1969, de las relaciones K/L , K/LMN publicadas por Legrand y col. 1974 y del coeficiente de conversión total, α_t , también de Legrand y col. 1974. Las constantes atómicas del Te: $\omega_K = 0,875 \pm 0,028$, $\bar{\omega}_L = 0,073 \pm 0,007$ y $n_{KL} = 0,917 \pm 0,046$ se han tomado del trabajo de Bambynek y col. 1972. Es importante señalar que el rendimiento Auger, $a_K = 0,125 \pm 0,028$, en átomos pesados como el Te, tiene una incertidumbre del orden del 25%, lo cual repercute en un 6% en el cálculo de la eficiencia.

La emisión fotónica se muestra en la tabla VIII(c). Por la proximidad entre los valores energéticos de ciertas líneas X, se dan las energías promediadas de ambas, así como la intensidad total de todas ellas. La energía de la transición gamma se ha tomado de las tablas de Lederer y col. 1978, mientras que su intensidad absoluta se ha calculado a partir de los coeficientes de conversión.

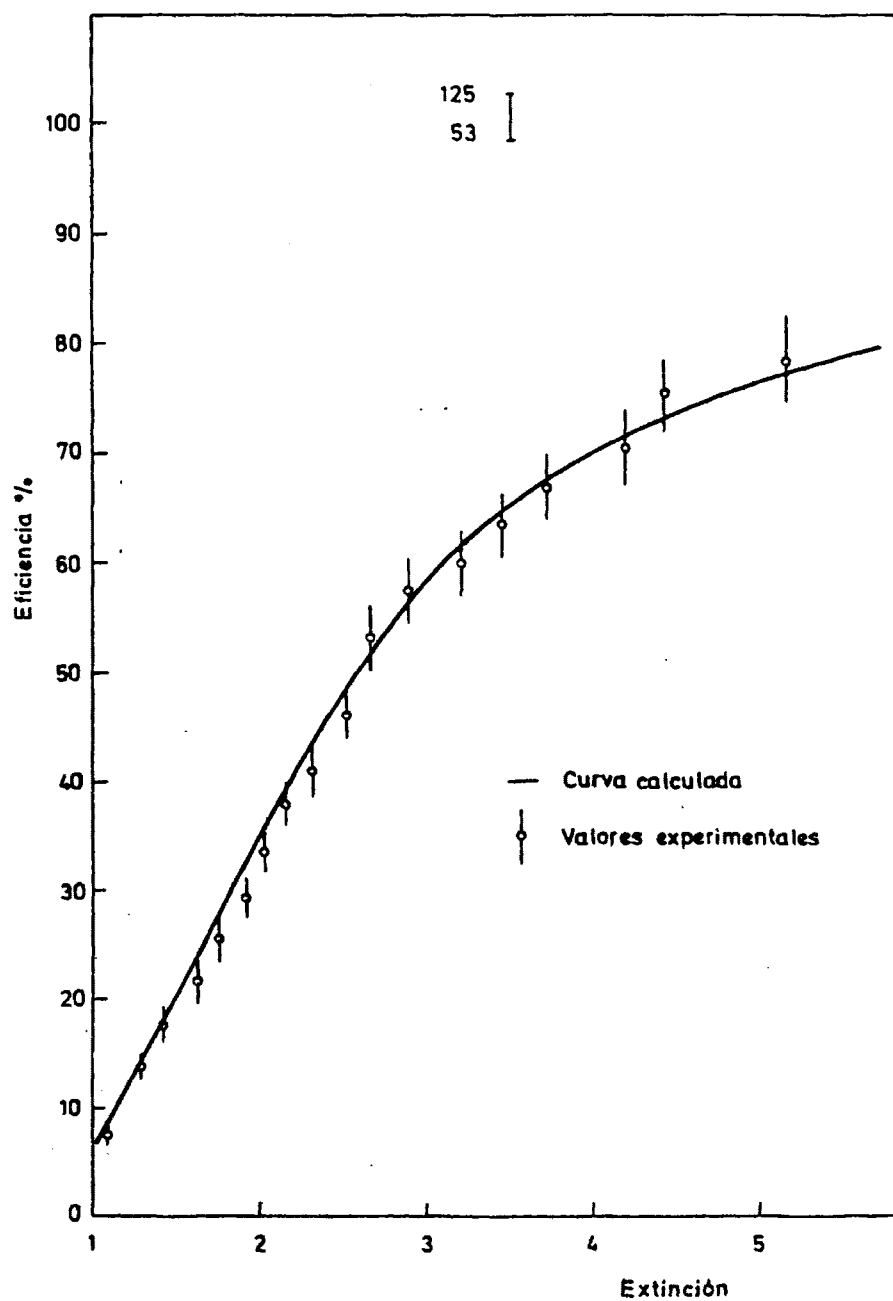


Fig. 82 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

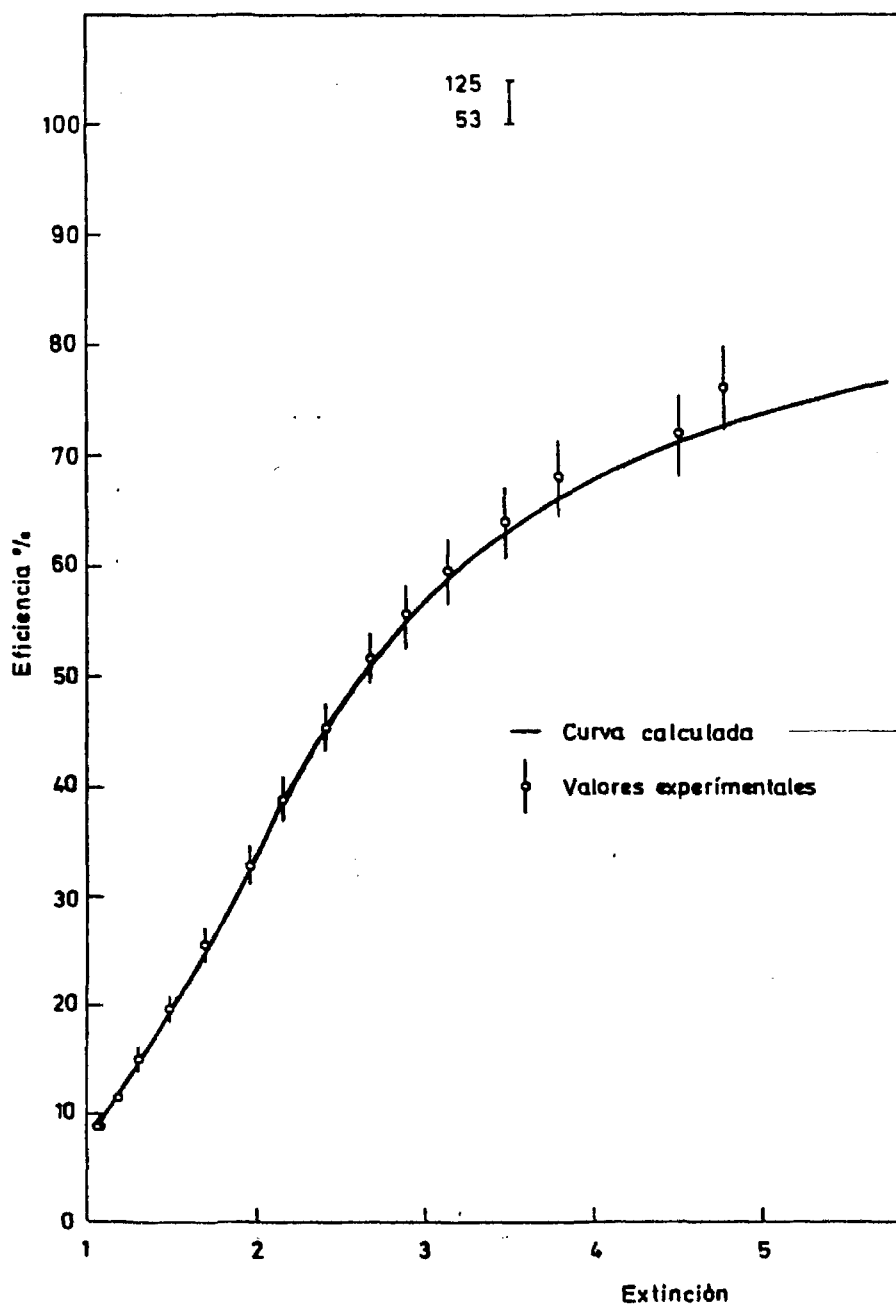


Fig. 83 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

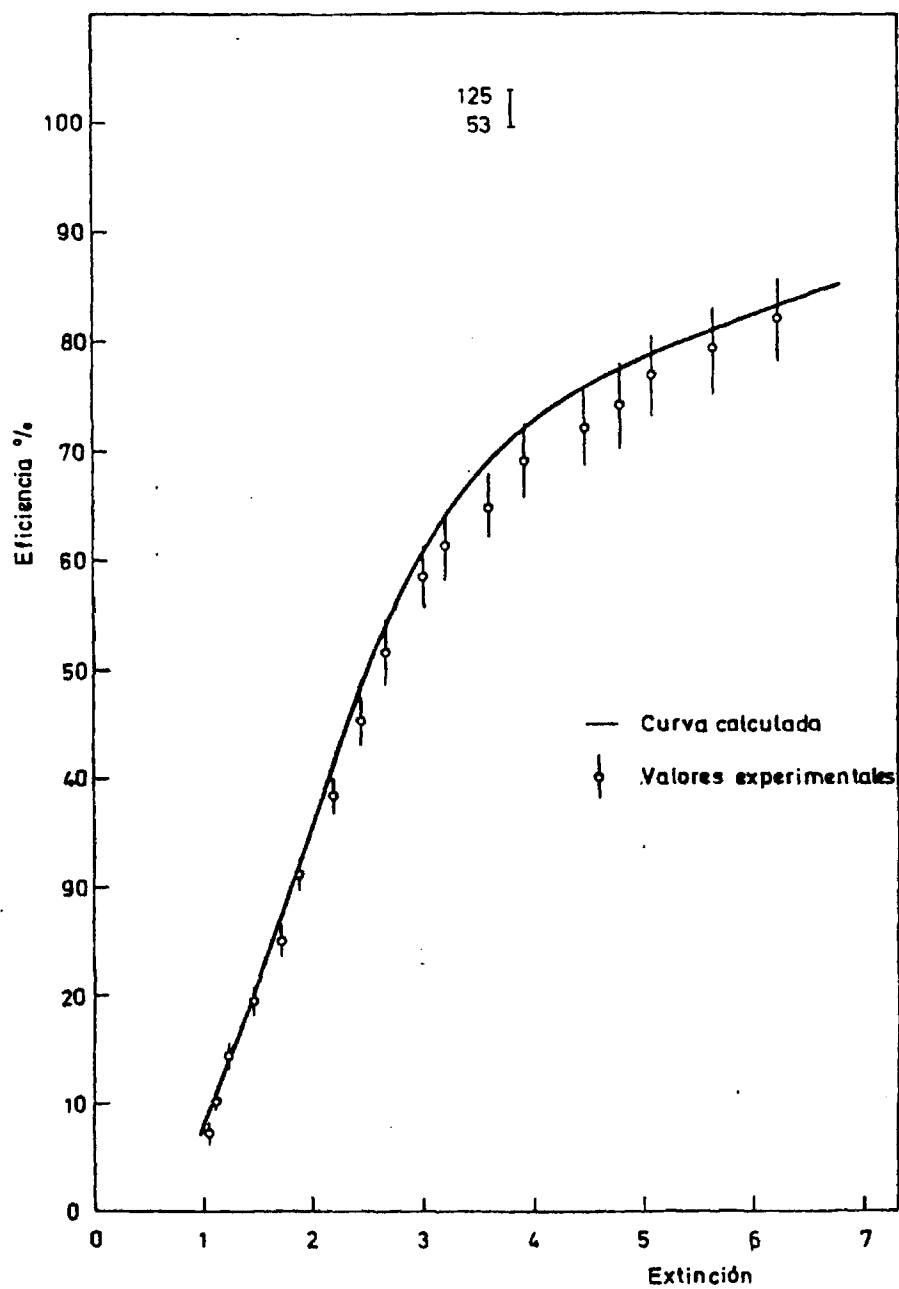


Fig. 84 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

Como los fotones gamma son de muy baja energía (35 keV), la interacción con el centelleador es prácticamente fotoeléctrica y por lo tanto fácilmente computable su contribución a la eficiencia. Por consiguiente, no se ha efectuado ninguna experiencia adicional, como en el caso de otros nucleidos en los que el efecto Compton era predominante frente al fotoeléctrico.

La incertidumbre de las curvas teóricas de eficiencia (figuras 82, 83 y 84) es inferior al 7% en las situaciones más desfavorables. Debido a la longitud de los cálculos y a las hipótesis simplificadoras introducidas (apartado 3.2 del capítulo III) no parece posible el cálculo riguroso de la incertidumbre; así pues, se ha determinado una cota máxima de la misma.

La concordancia entre la curva teórica y los valores experimentales, en el caso del dioxano, es muy buena. Aunque los valores experimentales, para el tolueno y el Insta-Gel, están por debajo de los teóricos, ambos concuerdan dentro de los errores. Hay que señalar que la forma química del compuesto marcado con ^{125}I ha influido muy favorablemente en la exactitud de las medidas.

5.4.5 Cerio 139

Este nucleido se desintegra por captura electrónica, dando lugar a un estado excitado, de 166 keV de energía y 1,5 ns de vida media, del ^{139}La . Hasta el presente no se ha puesto en evidencia la existencia de una transición por captura electrónica directa al estado fundamental del ^{139}La .

Se ha partido de una solución calibrada por el L.M.R.I. de Francia. La composición química de la solución era de $12\mu\text{g/g}$ de CeCl_3 en HCl 0,1 N y la concentración de la actividad de $(9,446 \pm 0,17) \times 10^5$ Bq/g, equivalentes a $25,53 \pm 0,46\mu\text{Ci/g}$.

Como la concentración radiactiva era excesiva, se procedió a una dilución con HCl 0,1 N y la misma proporción de portador que en la solución ori-

ginal. La concentración radiactiva resultó ser de $(1,31 \pm 0,03) \times 10^4$ Bq/g, es decir, de $0,354 \pm 0,008 \mu\text{Ci/g}$.

Para preparar las 12 muestras con centelleador de dioxano así como las 13 de Insta-Gel se adicionaron directamente al centelleador del orden de 100 mg de solución radiactiva diluida. Las 15 muestras con centelleador de tolueno se prepararon incorporando del orden de 100 mg de solución radiactiva a $1,5 \text{ cm}^3$ de etanol absoluto. La mezcla se completó con $13,5 \text{ cm}^3$ de centelleador de tolueno. En la experiencia se empleó como extintor tetracloruro de carbono.

En la tabla IX se han reunido los valores de las distintas magnitudes utilizadas en el cálculo de la eficiencia teórica.

Los valores de P_K , P_L , P_{MN} de la tabla IX(a) se han obtenido del trabajo de Legrand y col. 1973 y las además magnitudes de las tablas de Lederer y col. 1978. Los datos relacionados con la emisión de electrones Auger se detallan en la tabla IX(b). Las energías de los grupos KLL se han obtenido del trabajo de Shirley 1973 y las de los grupos KLX, KXY y de los electrones Auger L se han calculado a partir de los datos de las tablas de Bearden y col. 1967. Las intensidades absolutas de emisión Auger K y L se han calculado mediante las constantes atómicas del La: $\omega_K = 0,906 \pm 0,026$, $\bar{\omega}_L = 0,110 \pm 0,015$; $n_{KL} = 0,88 \pm 0,04$; el coeficiente de fluorescencia K y n_{KL} se han tomado del trabajo de Bambynek 1972, mientras que $\bar{\omega}_L$ se ha sacado del trabajo de Nix 1972. Las intensidades relativas de los distintos grupos de electrones Auger K se han computado a partir de las relaciones KLX/KLL y KXY/KLL, tomadas de las tablas de Venugopala Rao y col. 1972.

Finalmente, en la tabla IX(c) se detalla la emisión fotónica subsiguiente a la captura electrónica. Las energías de los distintos rayos X se han extraído de las tablas de Bearden 1967; las intensidades absolutas K y L se han calculado con la ayuda de las constantes atómicas del La; las intensidades absolutas de cada una de las transiciones X se han computado mediante

¹³⁹
₅₈Ce

(a) TRANSICION POR C.E.

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P _K	P _L	P _{MN}
90 ± 5	100	5,3	Permitida	0,673 ± 0,015	0,259 ± 0,015	0,068 ± 0,006

(b) EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	26,24 - 27,80	5,1
KLX	31,30 - 33,44	2,5
KXY	36,20 - 38,90	0,3
Auger L	2,76 - 6,24	75,8 ± 8,4
Conversión K	126,93 ± 0,15	17,5 ± 0,2
Conversión L	159,58 - 160,37	2,3 ± 0,1
Conversión MN	164,50 - 165,84	0,53 ± 0,1

(c) EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
XK _α	33,03 - 33,44	61,9
XK _β	37,72 - 38,82	14,5
XL	4,1 - 6,3	9,4 ± 2
γ	165,85 ± 0,15	80,1 ± 0,3

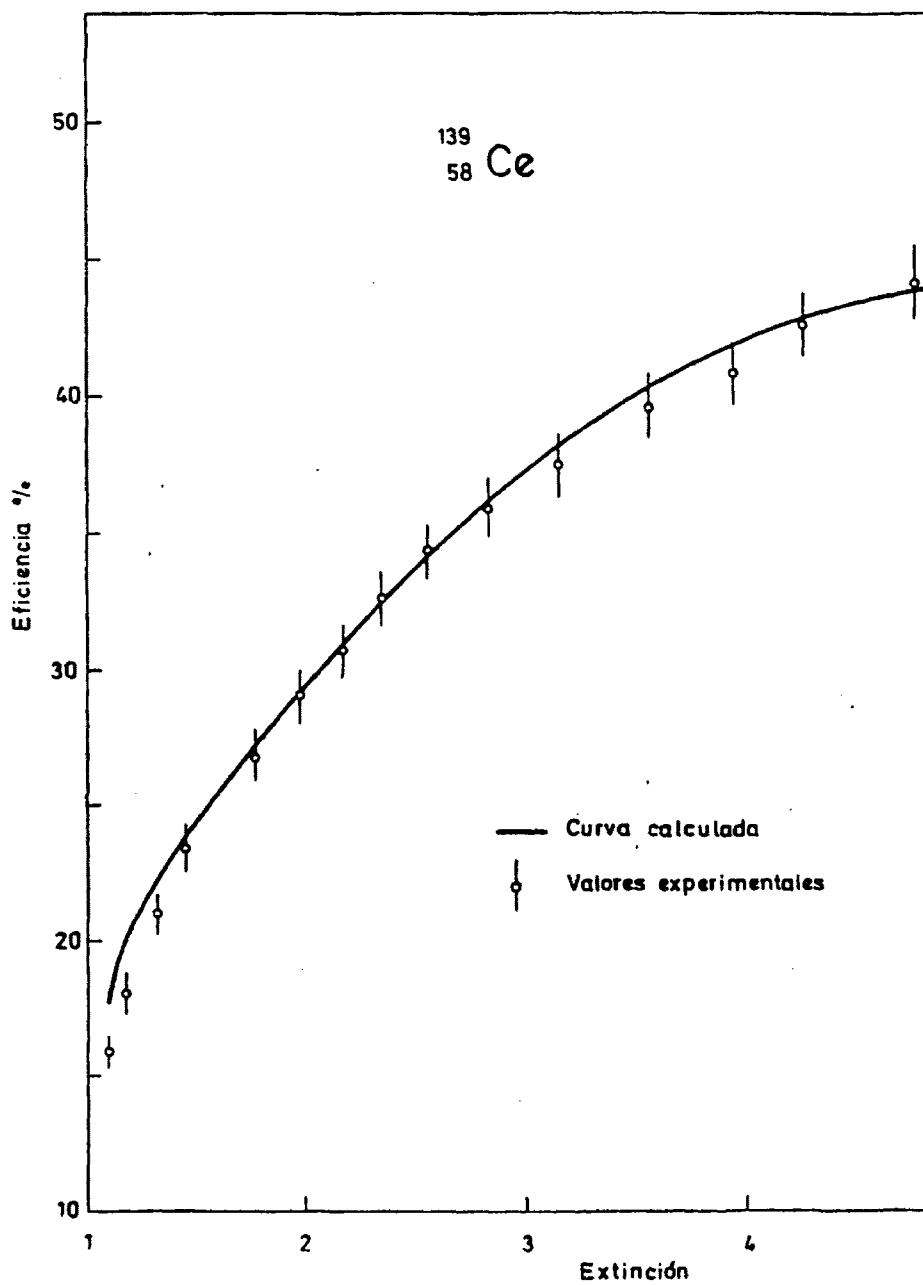


Fig. 85 - Eficiencia correspondiente al centelleador de telueno.

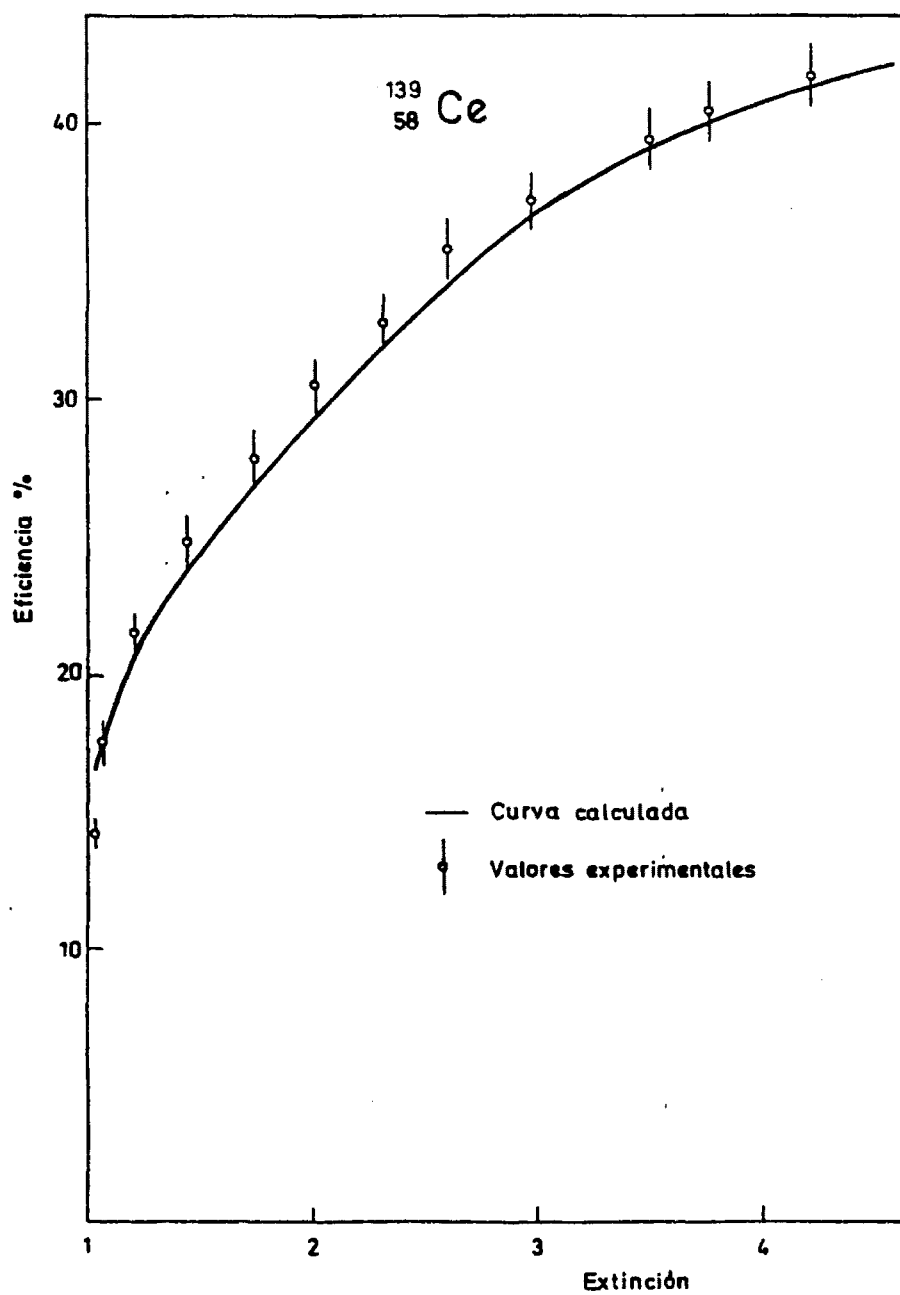


Fig. 86 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

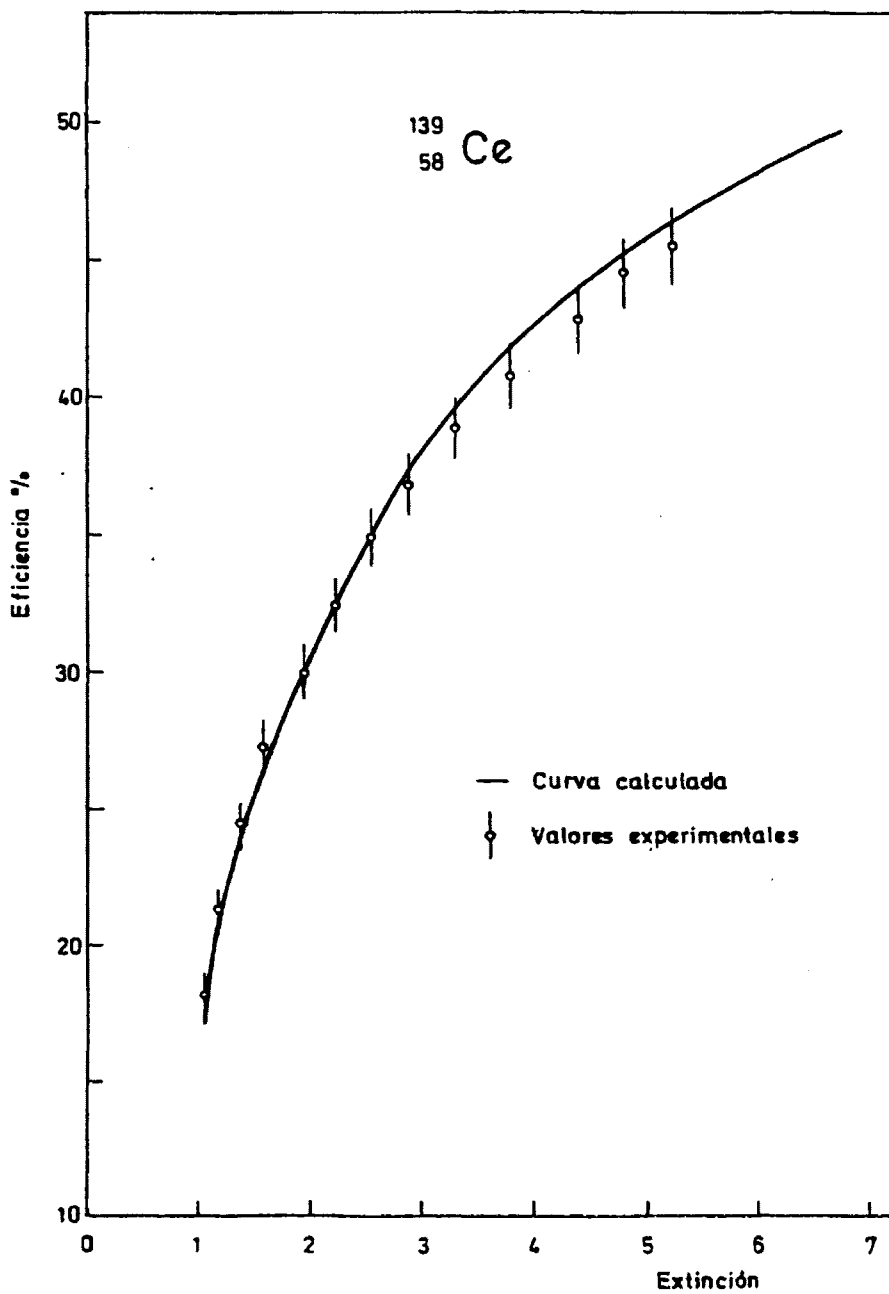


Fig. 87 - Eficiencia correspondiente al 'cintilador de Insta-Gel.

las relaciones entre las diferentes transiciones presentadas en las tablas de Salem y col. 1974; por último, la energía gamma (165,85 keV) se ha tomado de Black 1967 y su intensidad se ha calculado a partir del coeficiente de conversión total, α_t , extraído del trabajo de Legrand y col. 1973.

En las figuras 85, 86 y 87 se han representado los valores experimentales de las eficiencias en función del parámetro de extinción. Las incertidumbres de los valores experimentales de la eficiencia están comprendidas entre el 3 y el 4%, dependiendo de la extinción. El cálculo riguroso de las incertidumbres de las eficiencias teóricas no es factible debido a las hipótesis simplificadoras introducidas en el estudio del reajuste electrónico. La cota de incertidumbre en la eficiencia teórica se ha estimado inferior al 7% en todo el intervalo de extinción. El acuerdo entre los resultados experimentales y teóricos es bueno, si se exceptúa una ligera microprecipitación en el caso de las muestras con centelleador de tolueno más extinguidas.

5.5 NUCLEIDOS CON FORMAS COMPLEJAS DE DESINTEGRACION

Se ha comprobado anteriormente que el modelo de cálculo descrito da resultados concordantes con la experiencia para emisores beta, para emisores de positrones y para nucleidos que experimentan la captura electrónica. Por consiguiente, es de esperar que los nucleidos con esquemas de desintegración constituidos por combinaciones de estas formas de desintegración serán computables con más o menos dificultad.

En cuanto a la precisión del método, todo dependerá de la precisión de los datos de que se disponga, ya que, generalmente, cuando más complejo es el esquema de desintegración, mayores incertidumbres existirán en los datos tabulados.

Se han estudiado sólo tres nucleidos, de los cuales se disponía de patrones: ^{137}Cs , ^{65}Zn y ^{22}Na .

5.5.1 Cesio 137

El ^{137}Cs es un nucleido que se desintegra, en el 6,2% de los casos, - emitiendo partículas beta de 1176 keV de energía máxima, con lo que el núcleo de ^{137}Cs se transforma en ^{137}Ba estable, y en el 93,8% de las desintegraciones, la emisión beta de 514 keV deja al nucleido en estado isomérico ($^{137\text{m}}\text{Ba}$).

En todas las medidas efectuadas con este nucleido, el ^{137}Cs y el $^{137\text{m}}\text{Ba}$ -con periodos de semidesintegración de 30,2 años y 2,55 minutos, respectivamente- se encontraban en equilibrio genético; así pues, a la desintegración beta del ^{137}Cs hay que añadir la contribución de los electrones de conversión y de los fotones gamma del $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Hay que tener en cuenta, sin embargo, que ni los fotones ni los electrones de conversión son coincidentes con las partículas beta de la transición de 514 keV.

En el cálculo de la eficiencia de detección, el esquema de desintegración del $^{137}\text{Cs} - ^{137\text{m}}\text{Ba}$ se puede descomponer en tres partes: dos emisiones beta y una transición isomérica, lo cual simplifica notablemente los cálculos.

Desde el punto de vista experimental, si la tasa de los impulsos contados se divide por la tasa de las desintegraciones del ^{137}Cs de la muestra, la eficiencia de detección resultante será -en la mayoría de los casos- superior al 100%, ya que el número de partículas emitidas por la muestra son debidas a dos nucleidos distintos. Por lo tanto, para determinar la eficiencia de detección se ha utilizado la expresión siguiente:

$$\epsilon = \frac{N}{A(1 + f)} \quad (5.5.1)$$

en la cual, N es la tasa de recuento; A, la actividad; y f, la fracción de desintegraciones del ^{137}Cs que dan lugar a núcleos de $^{137\text{m}}\text{Ba}$.

Las muestras se prepararon a partir de una solución radiactiva de cloruro de cesio, marcada con ^{137}Cs , cuya composición química era de $20 \mu\text{g/g}$ de CsCl en HCl $0,1\text{N}$. Esta solución, suministrada por la Sección de Isótopos de la JEN, se calibró en nuestro laboratorio. El procedimiento seguido consistió en preparar 10 muestras puntuales, para lo cual se depositó una cantidad pesada -del orden de 50 mg de solución- sobre un soporte de "mylar". Después de evaporar a la temperatura ambiente se recubrió el depósito con una tira de papel adhesivo y cada una de las muestras se montó en su respectivo portamuestras.

La actividad de las muestras así preparadas se obtuvo por comparación de cada uno de sus espectros gamma con el espectro de una muestra patrón, del mismo radionucleido, calibrada por el Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra). La concentración de actividad resultó ser de $(1,731 \pm 0,064) \times 10^4 \text{ Bq/g}$, o sea, $0,468 \pm 0,017 \mu\text{Ci/g}$. A partir de la solución calibrada se prepararon 13 muestras con centelleador de tolueno, a base de añadir 2 cm^3 de tanol absoluto, del orden de 100 mg de solución radiactiva y 13 cm^3 de centelleador. Tanto las 15 muestras con centelleador de dioxano como las 13 con centelleador de Insta-Gel, se prepararon incorporando directamente a los 15 cm^3 del centelleador, del orden de 100 mg de solución radiactiva. En todos los casos se empleó el tetracloruro de carbono como extintor. Las incertidumbres en los valores experimentales de las eficiencias están comprendidas entre el 3,5 y el 4,5%.

En la tabla X se muestran los datos utilizados en el cálculo de la eficiencia de detección. Los valores de las energías máximas de los espectros beta se han tomado de los trabajos de Christmas y col. 1978, Wolfson y col. 1968 y Haue y col. 1966 y los valores de α_t , α_K e I_γ de Merrit y col. 1965, Hansen y col. 1969, Legrand y col. 1973, Goodier y col. 1975 y Christmas y col. 1978. Los valores tabulados corresponden a los valores medios ponderados, publicados por los autores que anteriormente se citan. De la misma forma, el valor de la relación K/L corresponde al promedio ponderado de los resultados publicados por Blaerker y col. 1953 y Yoshizawa 1958; se -

TABLA X

$^{137}_{55}\text{Cs} - ^{137\text{m}}_{56}\text{Ba}$

EMISION ELECTRONICA

	Energía en keV	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	25,32 - 26,79	0,50
KLX	30,16 - 32,18	0,23
KXY	34,86 - 37,41	0,03
Auger L	2,66 - 5,96	7,4 \pm 0,6
Conversión K	624,2 \pm 0,007	7,70
Conversión L	655,6 - 656,4	1,43
Conversión MN	660,3 - 661,6	0,28
β_1^-	max: 513,9 \pm 0,7 media: 178 \pm 1	6,21 \pm 0,95
β_2^-	max: 1173 \pm 3 media: 406 \pm 1	93,79 \pm 0,95

EMISION FOTONICA

	Energía en keV	Intensidad absoluta %
XK α	31,8 - 32,2	5,66
XK β	36,3 - 37,3	1,28
XL	4,9 - 5,8	0,8 \pm 0,1
γ	661,6	85,4 \pm 0,8

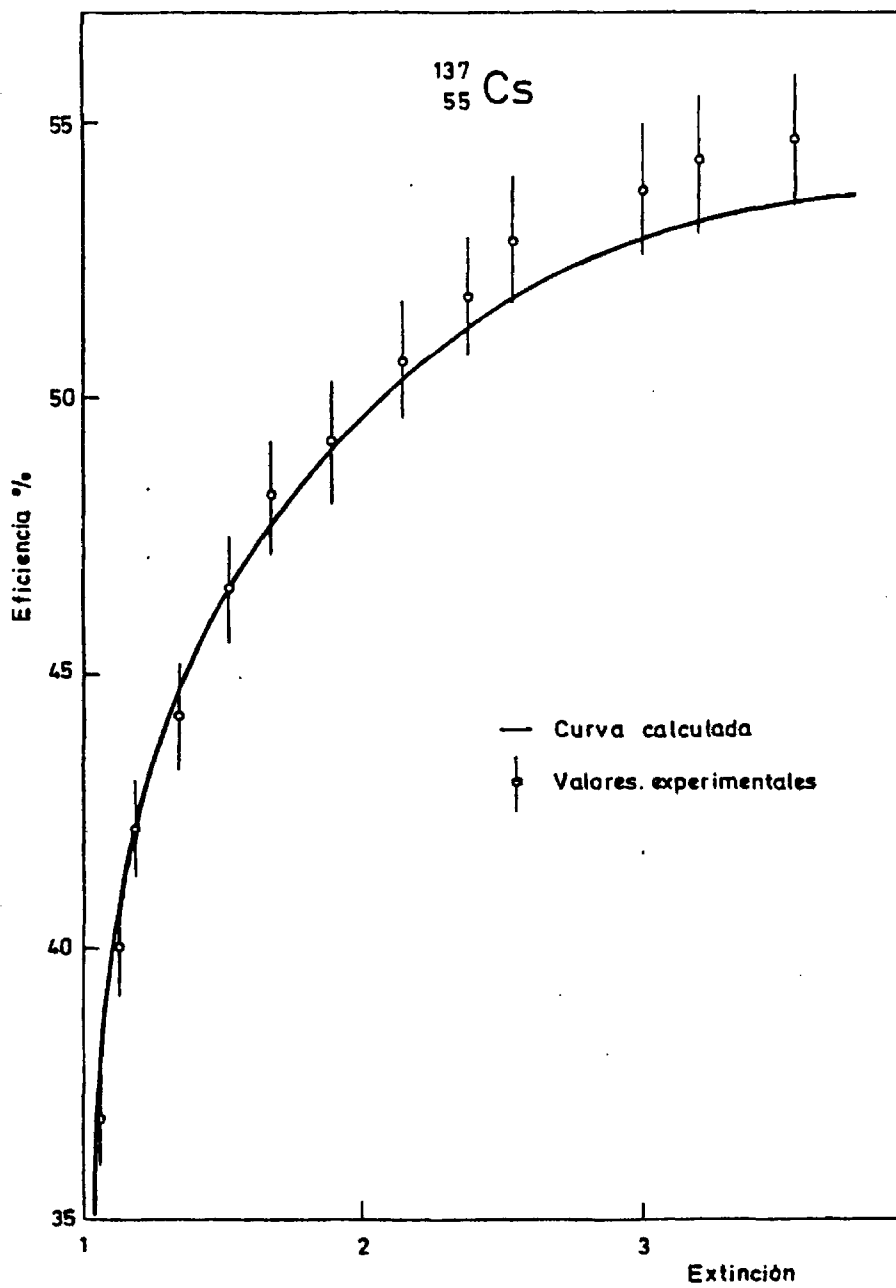


Fig. 88 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

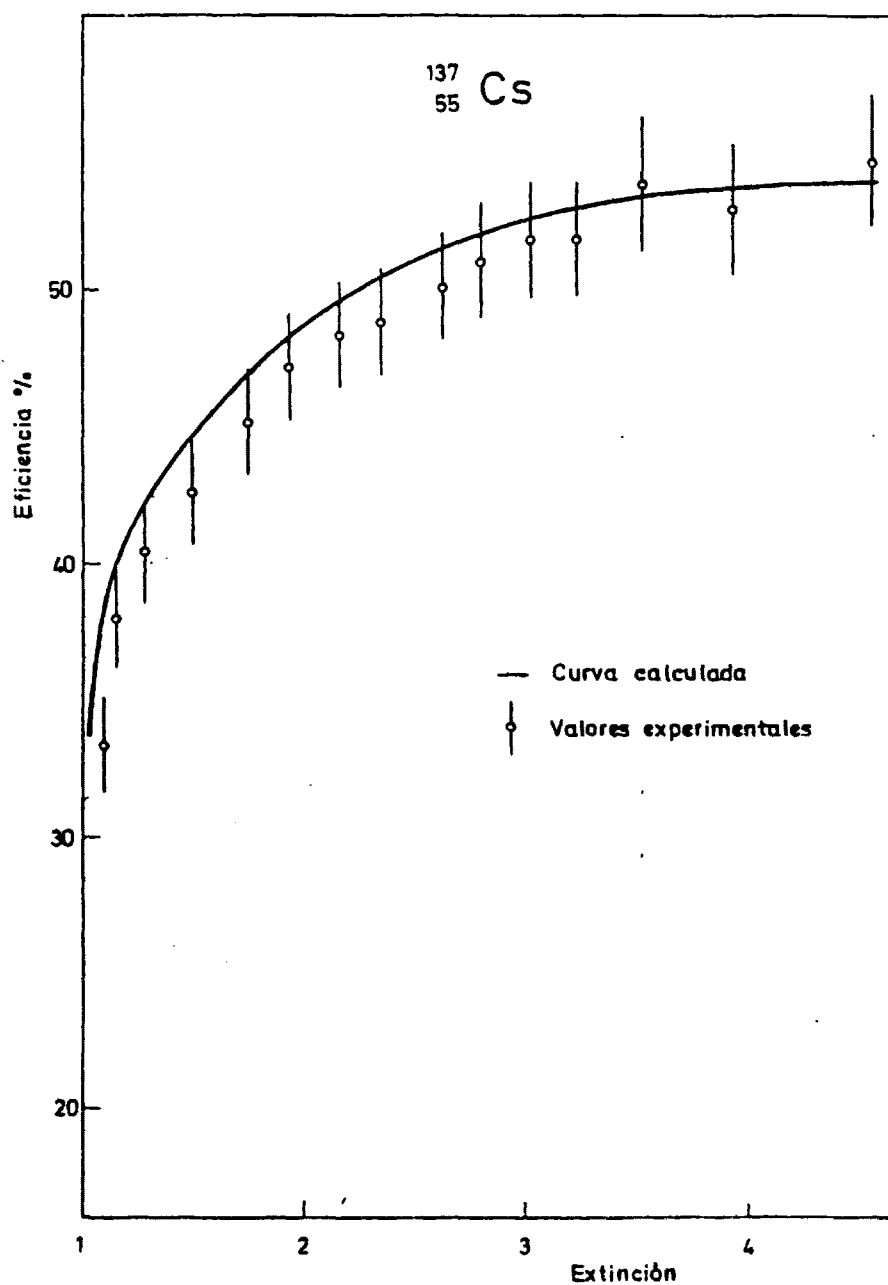


Fig. 89 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

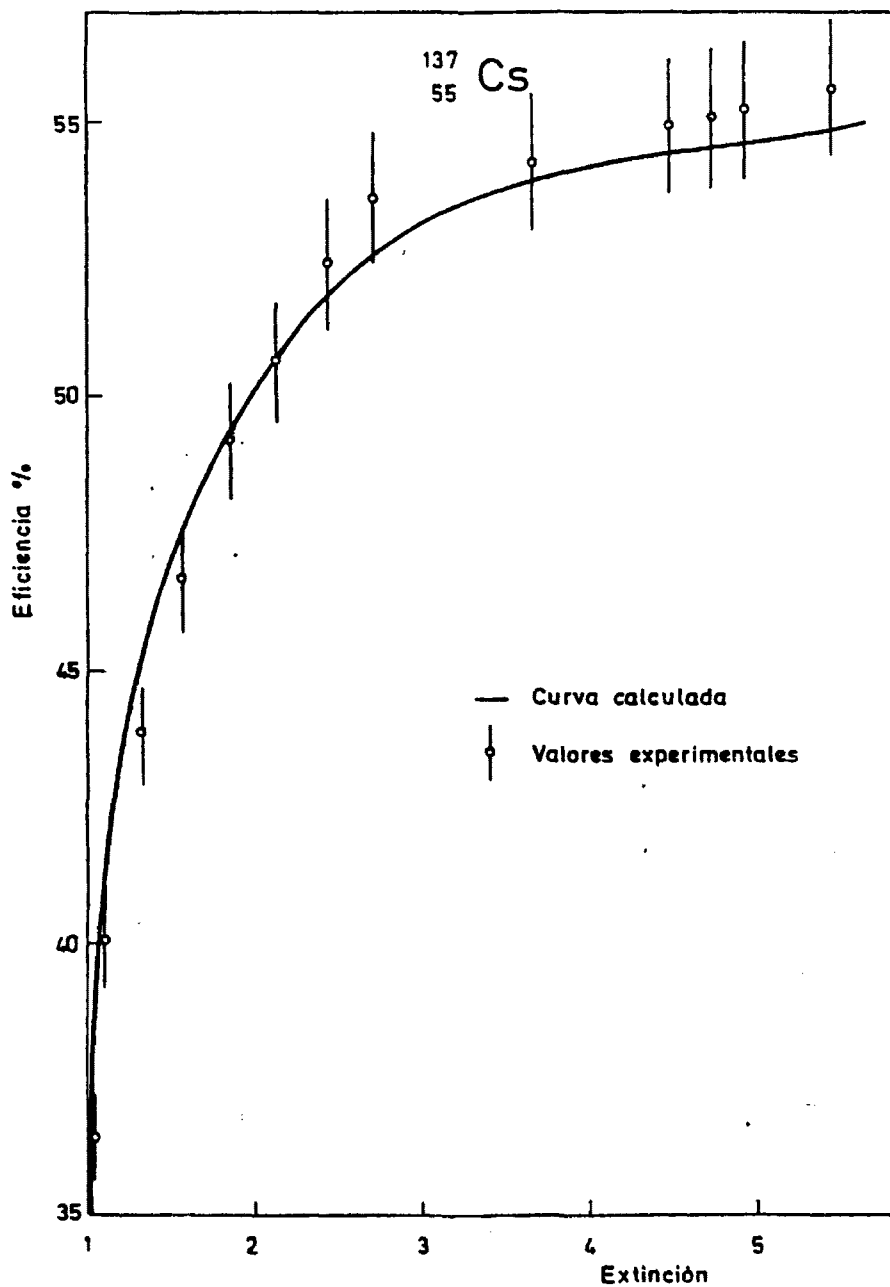


Fig. 90 - Eficiencia correspondiente al contilleador de Insta-Gel.

han rechazado valores mucho más recientes pero con peor precisión. Para la relación $K/(LMN)$ se han promediado, ponderadamente, todos los valores recopilados por Christmas y col. 1978. Por último, el valor de la energía de los fotones gamma se ha seleccionado de las tablas de Lederer y col. 1978. La cota de incertidumbre en la eficiencia teórica resulta inferior al 5%.

De la comparación de los resultados experimentales con los teóricos - (figuras 88, 89 y 90) se puede concluir que el acuerdo entre ambos es satisfactorio. Las diferencias sistemáticas entre los valores experimentales y teóricos, en el caso del centelleador de dioxano, pueden ser puramente casuales, o bien, deberse a la precipitación parcial del ^{137m}Ba , lo cual nos parece más probable, dada la insolubilidad de los compuestos de bario.

5.5.2 Zinc 65

El ^{65}Zn se desintegra en el 98,56% de los casos por captura electrónica y en el 1,44% restante por emisión de positrones. Del total de capturas electrónicas, el 48,5% van a parar al nivel fundamental del ^{65}Cu y el 51,5% al nivel excitado de 1115,45 keV del mismo nucleido. La desexcitación de este nivel, con una vida media de 0,26 ps, se produce mediante la emisión de un fotón gamma en el 100% de las desintegraciones. La emisión del fotón y la captura electrónica al nivel excitado son, por lo tanto, eventos simultáneos para el detector.

Los datos experimentales de las figuras 91, 92 y 93 se han obtenido a partir de una solución calibrada por el L.M.R.I. de Francia. La composición química de dicha solución era de $200\text{ }\mu\text{g/g}$ de ZnCl_2 en HCl 0,1 N y la concentración radiactiva era de $7,792 \times 10^5\text{ Bq/g}$, equivalentes a $21,06\text{ }\mu\text{Ci/g}$, con una incertidumbre global del 2%.

Se prepararon 10 muestras con centelleador de tolueno, 10 con centelleador de dioxano y 16 con centelleador de Insta-Gel. A todas ellas se les incorporó del orden de 10 mg de solución radiactiva.

Los valores de la tabla XI(a) se han extraído de las tablas de Lederer y col. 1978. Los datos de la emisión electrónica, detallados en la tabla XI (b) se han obtenido de las siguientes referencias: las energías Auger KLL - de Shirley 1973 y las energías Auger KLX, KXY y L de Bearden y col. 1967. - Las intensidades absolutas de las emisiones Auger K y L se han calculado a partir de las constantes atómicas del Cu: rendimiento de fluorescencia K, $\omega_K = 0,445 \pm 0,009$; rendimiento medio de fluorescencia L, $\bar{\omega}_L = 0,064 \pm 0,002$; y el número total de vacantes L creadas por transiciones $L \rightarrow K$, $n_{KL} = 1,36 \pm 0,08$. Las tres constantes se han obtenido del trabajo de Bambynek y col. 1972. Para el cálculo de algunas intensidades se ha recurrido a las relaciones KLX/KLL y KXY/KLL tabuladas por Venugopala Rao y col. 1972.

En la tabla XI(c) donde se expone la emisión fotónica, las energías de las transiciones X se han calculado a partir del trabajo de Bearden 1967 y las intensidades absolutas de los rayos XK y XL a partir de las constantes atómicas del Cu. Para el cálculo de las intensidades absolutas de la estructura fina se han elegido los valores de las relaciones entre intensidades - publicadas por Salem y col. 1974. Por último, tanto la energía de los fotones gamma como su intensidad se han seleccionado de las tablas de Lederer y col. 1978.

Con este nucleido también se ha comprobado que la tasa de recuento debida a la radiación gamma no varía apreciablemente con la extinción. Ello - era previsible después de los resultados obtenidos con otros nucleidos. Las incertidumbres de los valores experimentales, como se puede comprobar en - las figuras 91, 92 y 93, son del orden del 4 al 5%. El acuerdo entre los resultados teóricos y experimentales es bueno para valores del parámetro de - extinción superiores a 3,5. Para $Q < 3,5$ se observa que algunos puntos experimentales muestran discrepancias respecto a los valores teóricos de más - del 5%. De todas formas, hay que tener en cuenta que la incertidumbre de la curva teórica es del orden del 5 al 6% y que algunas de las discrepancias - podrían ser debidas a una polarización de los errores en un sentido.

TABLA XI

⁶⁵Zn
30

(a) DESINTEGRACION BETA

Tipo	Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P _K	P _L	P _M
C.E.	1356 ± 4	47,7 ± 0,2	7,5	Permitida	0,879 ± 0,003	0,105 ± 0,002	0,016 ± 0,002
	240 ± 4	50,8 ± 0,2	5,9	Permitida			
β ⁺	324 ± 4	1,46 ± 0,02	7,5	Permitida	—	—	—

(b) EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K		
KLL	6,73 - 7,06	18,71
KLX	7,76 - 8,05	5,51
KXY	8,74 - 8,98	0,56
Auger L	0,69 - 1,09	65,7 ± 8,0
β ⁺	max: 324 ± 4 med: 143 ± 6	1,46 ± 0,02

(c) EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
X _L	0,83 - 1,02	0,42 ± 0,05
X _α	9,22 - 9,25	17,49 ± 0,30
X _β	8,90 - 8,98	2,38 ± 0,03
γ [±]	511,006 ± 0,002	2,92 ± 0,04
γ	1115,18 ± 0,25	50,8 ± 0,2

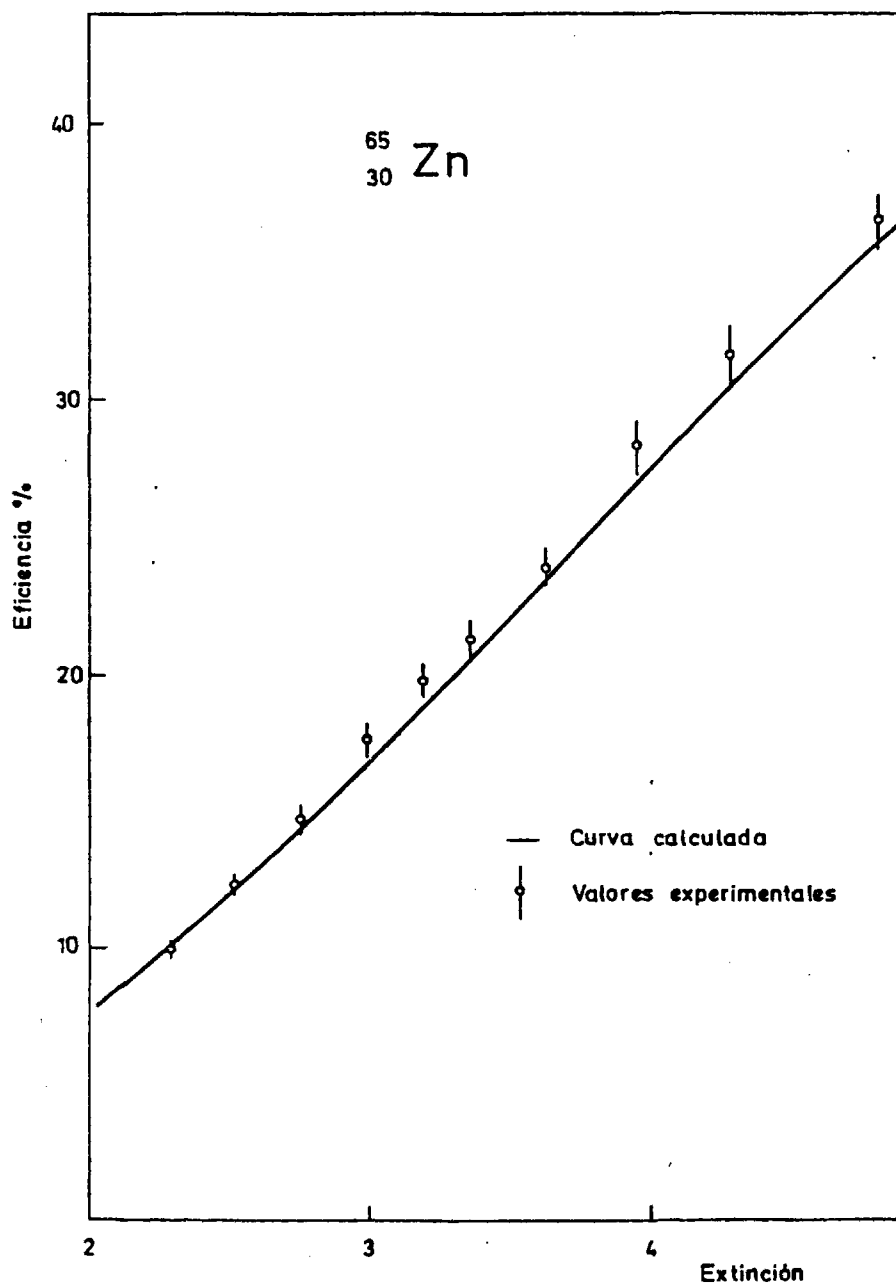


Fig. 91 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

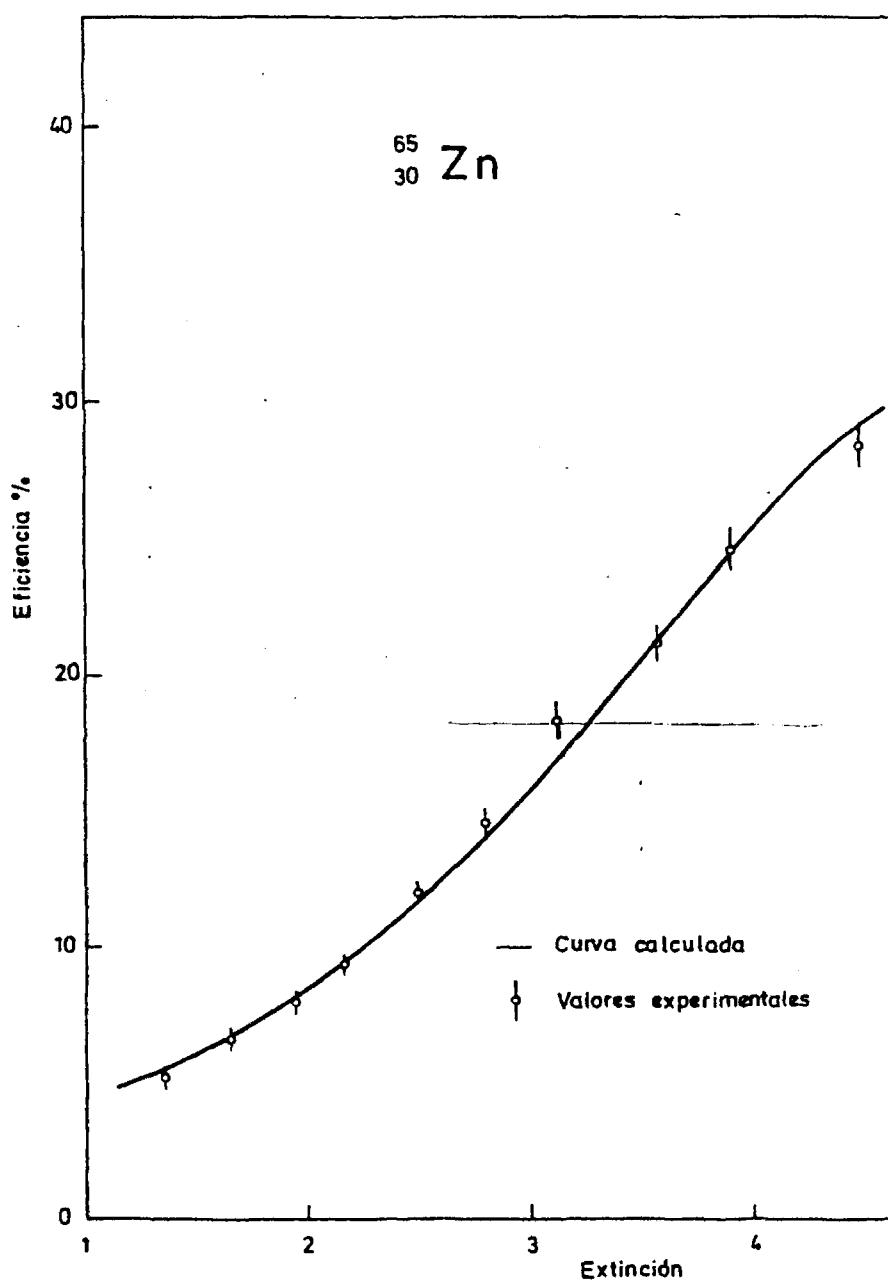


Fig. 92 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

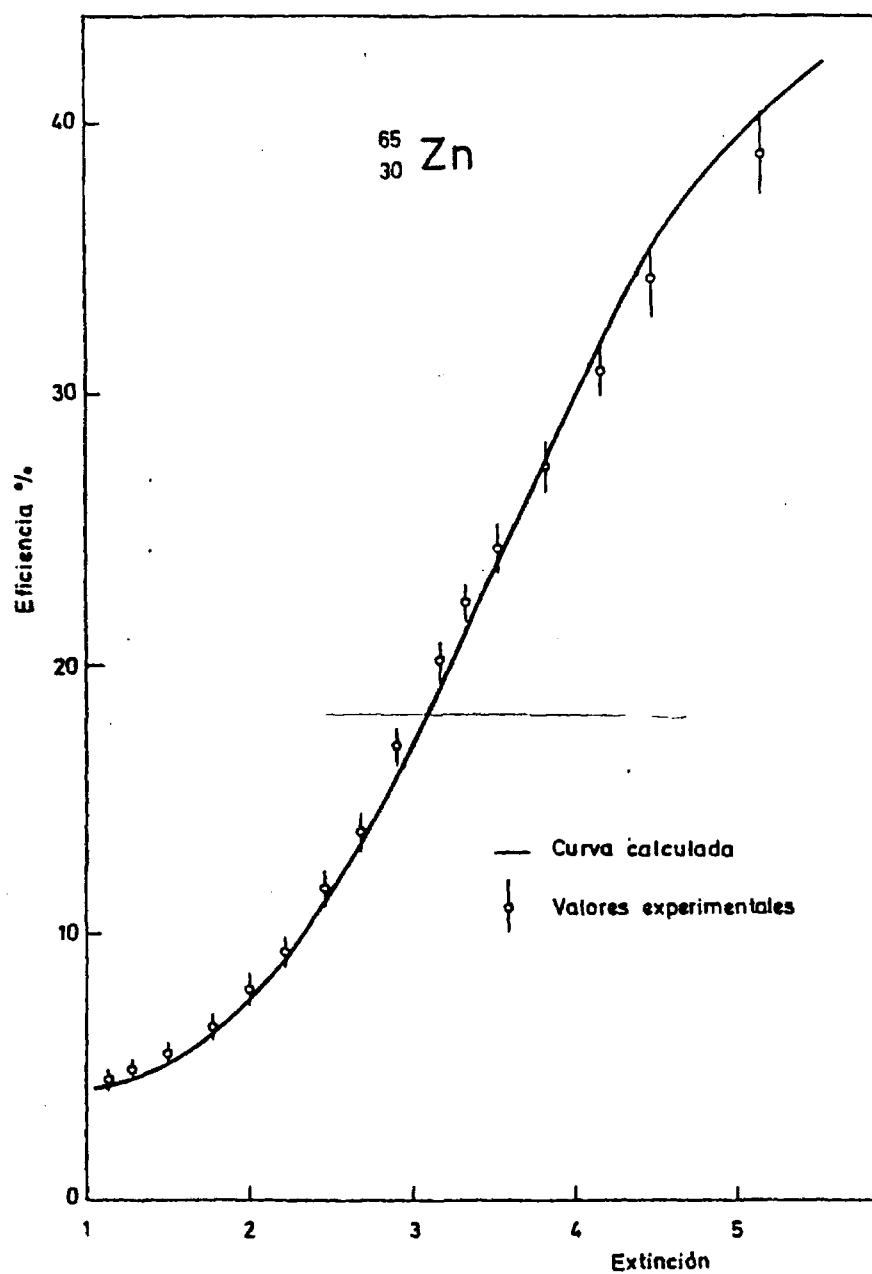


Fig. 93 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

5.5.3 Sodio 22

El ^{22}Na se desintegra en el 90,50% de los casos al nivel excitado de - 1275 keV del ^{22}Ne y en el 9,45% al mismo nivel, mediante captura electrónica. Sólo en el 0,05% de las desintegraciones alcanza directamente el nivel fundamental del ^{22}Ne (fig. 13).

La solución radiactiva usada en el trabajo experimental fue preparada por la Sección de Isótopos de la JEH. La composición química de la misma era $10\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^3$ de NaCl en solución acuosa. La calibración de la solución se efectuó mediante espectrometría gamma, para lo cual se prepararon ocho muestras puntuales, por el procedimiento de depositar una cantidad pesada de solución -del orden de 50 mg- sobre un soporte "mylar". Una vez evaporado el depósito, a temperatura ambiente, se recubrió con papel adhesivo.

Las muestras así preparadas se compararon con una muestra patrón del mismo radionucleido calibrada por el Radiochemical Centre de Amersham (Inglaterra). Para la comparación se recurrió a la determinación del área del pico de absorción total, del espectro gamma, producido por los fotones de - 1275 keV. El valor obtenido para la concentración de actividad fue de $(3,27 \pm 0,10) \times 10^4$ Bq/g, equivalentes a $0,884 \pm 0,027\text{ }\mu\text{Ci/g}$.

A partir de la solución calibrada se prepararon 16 muestras con centelleador de tolueno. A fin de que fueran estables y no aparecieran fases se incorporaron $0,1\text{ cm}^3$ de HCl 0,1 N, del orden de 70 mg de solución radiactiva, 3 cm^3 de etanol absoluto y 12 cm^3 de centelleador de tolueno. Las 15 muestras con centelleador de dioxano se prepararon con 15 cm^3 de centelleador; $0,01\text{ cm}^3$ de acético concentrado y del orden de 70 mg de solución radiactiva. Por último, las 18 muestras con centelleador de Insta-Gel se obtuvieron añadiendo, a los 15 cm^3 de centelleador, del orden de 100 mg de solución radiactiva y $0,2\text{ cm}^3$ de agua. Se empleó tetracloruro de carbono para forzar la extinción.

En la tabla XII se detallan los valores utilizados en el cálculo de la

TABLA XII

$^{22}_{11}\text{Na}$

DESINTEGRACION POR C.E.

Energía keV	Intensidad %	log ft	Naturaleza	P _K	P _L
1567,4	9,52 ± 0,07	7,4	Permitida	0,923 ± 0,009	0,076 ± 0,006

EMISION ELECTRONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
Auger K β^+	0,76 - 0,83 max: 545,7 ± 0,5 med: 215,6 ± 0,8	9,3 ± 1,0 90,48 ± 0,07

EMISION FOTONICA

	Energía (keV)	Intensidad absoluta %
X _K Aniquilación γ	0,849 - 0,858 511,006 ± 0,002 1274,54 ± 0,04	0,17 ± 0,02 181,1 ± 0,4 99,95 ± 0,03

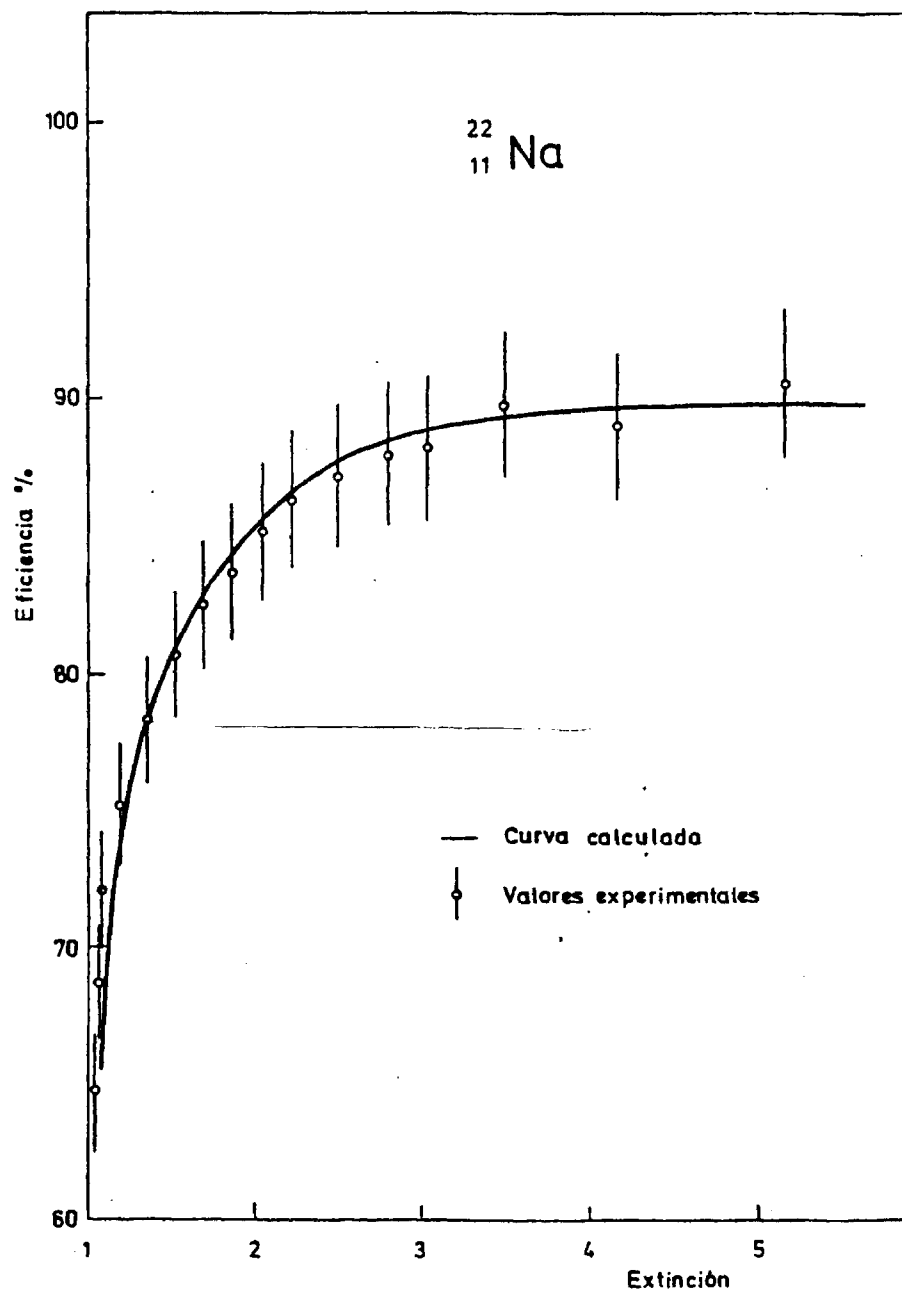


Fig. 94 - Eficiencia correspondiente al centelleador de tolueno.

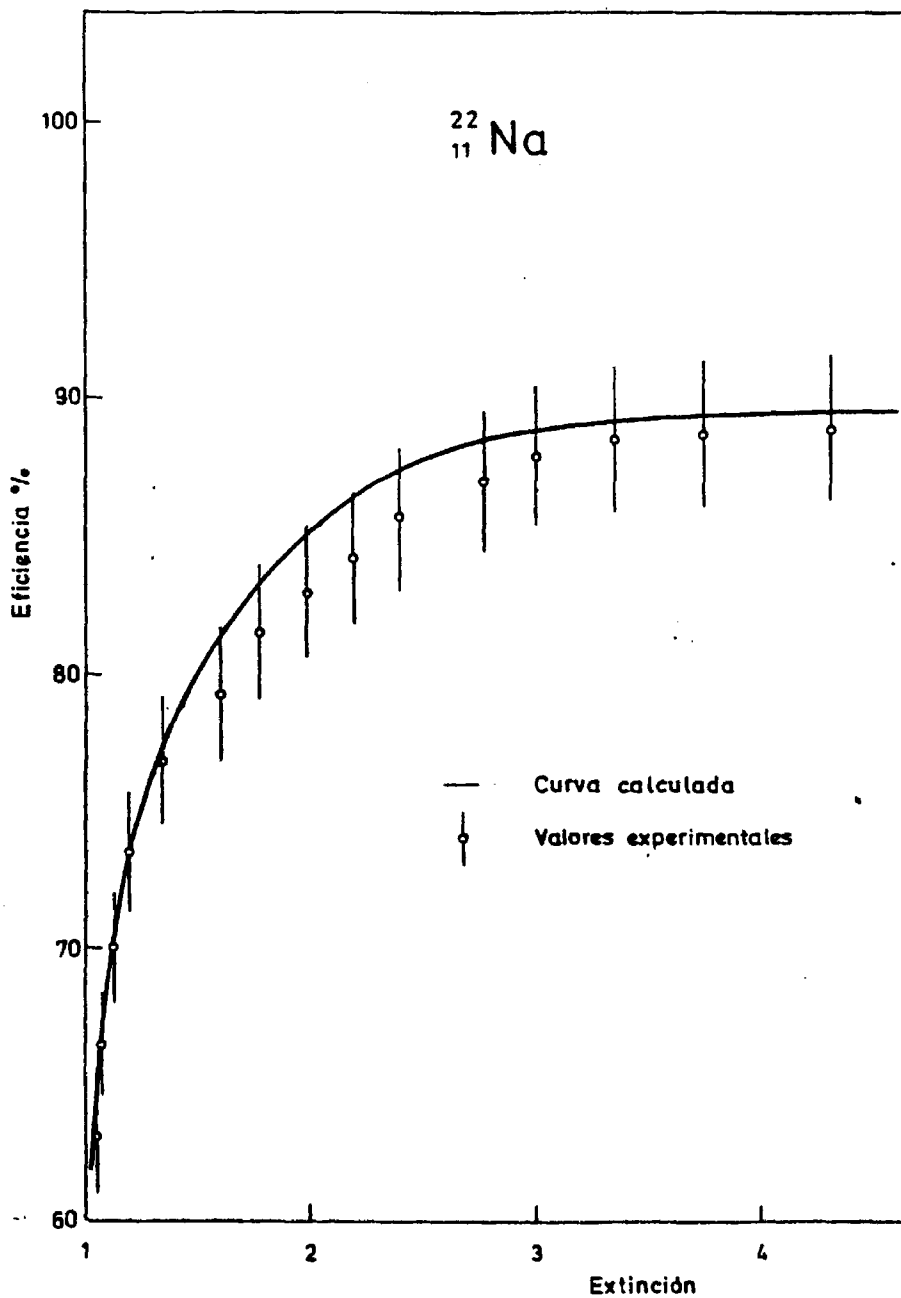


Fig. 95 - Eficiencia correspondiente al centelleador de dioxano.

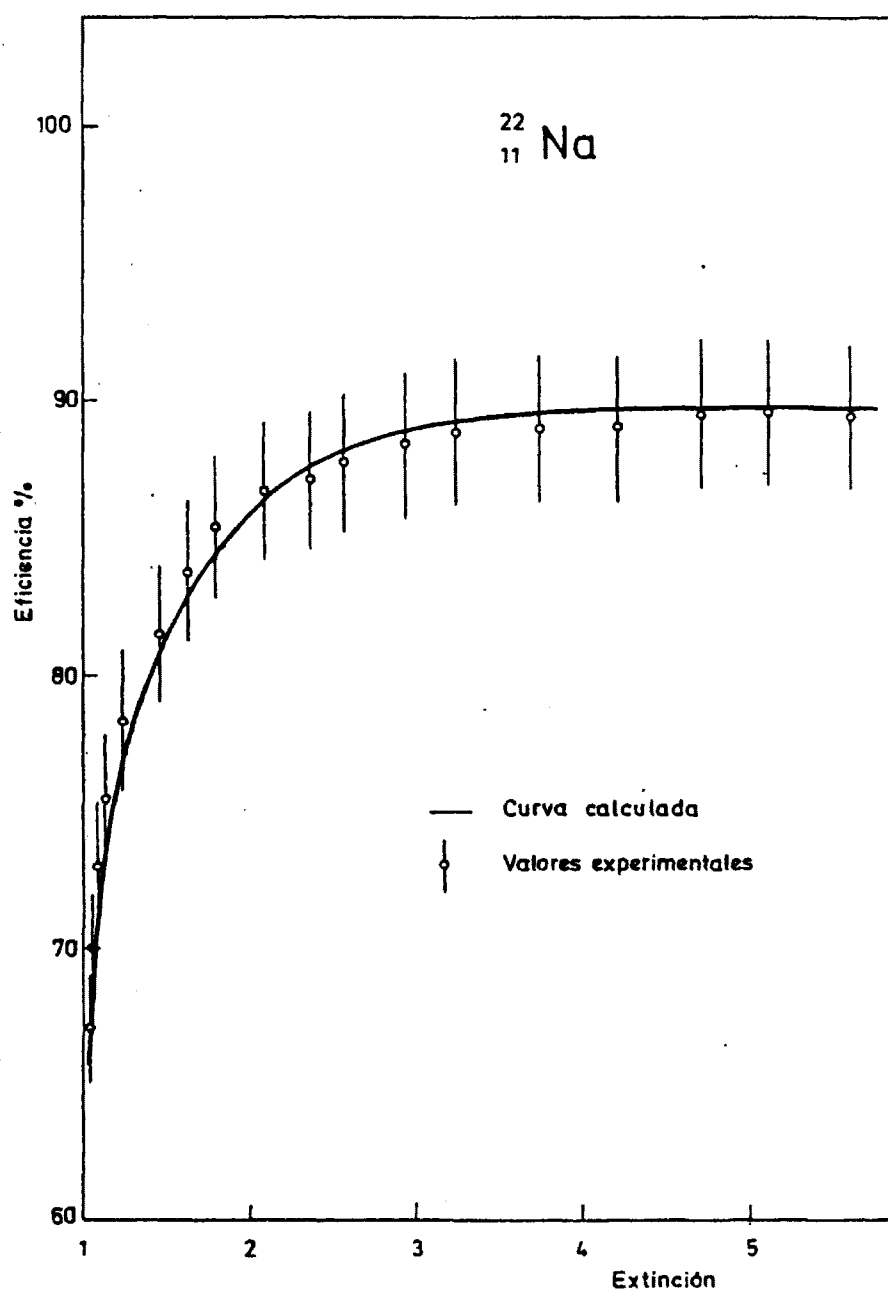


Fig. 96 - Eficiencia correspondiente al centelleador de Insta-Gel.

contribución de la captura electrónica a la eficiencia. El valor adoptado - para la intensidad de la captura electrónica es el valor medio ponderado de los resultados debidos a Williams 1964, Leutz y col. 1967, Vatai y col. 1968 y Mac Mahon y col. 1976. Las probabilidades de captura, P_K y P_L , se han tomado de las tablas de Legrand y col. 1974. El log ft se debe a Raman y col. 1973 y la energía de los positrones es el resultado de promediar ponderadamente los valores obtenidos por Beck y col. 1968, Charoenkwan 1965, Gils y col. 1972, Wenninger y col. 1968 y Wright 1953.

Puesto que para $Z < 13$ el rendimiento de fluorescencia depende del estado químico de la muestra, y de todos los resultados experimentales no existe, hasta la fecha, ninguno que corresponda al estado químico de nuestras muestras, se ha recurrido a promediar los valores teóricos debidos a Mc Guire - 1970, Kostroum y col. 1971 y Walters y Bhalla 1971; el resultado es: $\omega_K = 0,0183 \pm 0,0014$ (se ha tomado como incertidumbre la desviación típica de la media).

Las energías de los rayos X se han sacado de las tablas de Bearden - 1967 y las de los electrones Auger se han calculado a partir de los datos - de Bearden y Burr 1967. Las energías de los fotones gamma y de aniquilación son las publicadas por Legrand y col. 1974, lo mismo que las intensidades - correspondientes.

La incertidumbre en los cálculos teóricos de la eficiencia (figuras 94 y 95 y 96) es inferior al 5% y la de los valores experimentales del orden del 3%. El acuerdo entre los datos teóricos y experimentales es suficientemente bueno para justificar la aplicación del método de cálculo al caso de positrones. El hecho de que en el entorno de $Q = 2$ la eficiencia experimental - para el dióxano sea sistemáticamente inferior a la teórica parece puramente fortuito, dado el acuerdo en los otros centelleadores.

CONCLUSIONES

El estudio teórico y experimental de la eficiencia de detección de un espectrómetro basado en el centelleo en fase líquida, que se ha aplicado en esta memoria a la medida de los nucleidos que sufren desintegración beta o beta-gamma, ha permitido establecer las siguientes conclusiones:

- 1* - Se ha desarrollado un método que permite obtener la curva de eficiencia en función de la extinción para cualquier nucleido que se transforme - por desintegración beta o se desexcite por emisión gamma, no siendo necesario más que disponer de la curva experimental de un nucleido patrón.
- 2* - Se ha mostrado que el tritio es el nucleido patrón idóneo para el método propuesto, ya que la transmisión de las incertidumbres, en el cálculo de la eficiencia de otros nucleidos, es tanto menor cuanto mayor es la energía máxima del espectro considerado.
- 3* - Una conclusión importante del modelo teórico descrito es que la concentración del soluto primario o del soluto secundario no influyen en la precisión del método. Esto ha sido comprobado experimentalmente para el PPO y el dimetil-POPOP.
- 4* - Del mismo modelo teórico se deduce que ni el volumen ni la naturaleza de la solución centelleadora influyen en la precisión del método, lo cual - también se ha comprobado experimentalmente.
- 5* - Como resultado, tanto de los cálculos como de la experimentación, se deduce que el efecto de pared es despreciable -menor del 1% para energías beta inferiores a 1 MeV. Para energías mucho mayores -del orden de 2 MeV- y extinciones elevadas $Q = 1,5$, este efecto puede modificar la eficiencia, reduciéndola en un cuatro por ciento.

6* - Se ha demostrado experimentalmente que, en el caso de emisores beta puros, el método de cálculo de la eficiencia descrito en esta memoria es aplicable a espectros beta con energías máximas comprendidas entre 18 keV y 3 - MeV, cualquiera que sea el tipo de prohibición de la transición.

7* - También se ha comprobado que no es siempre correcta la hipótesis, admitida por la mayoría de los autores, de que la curva de la eficiencia en función de la extinción se ajusta a un polinomio de segundo o tercer grado. En particular, se ha probado que, con ciertos fotomultiplicadores, la curva correspondiente al ^{14}C no cumple esta regla.

8* - Por primera vez se ha descrito un método que permite comprobar si una muestra presenta cristalizaciones o microprecipitaciones. La aplicación de este método obligará a revisar muchos resultados experimentales, obtenidos con soluciones de sales inorgánicas, y permitirá estudiar, de forma cuantitativa, la influencia de la cristalización y de la microprecipitación en la eficiencia de detección.

9* - Para el estudio de la eficiencia de detección en la captura electrónica, se ha desarrollado un modelo teórico que permite obtener resultados en muy buen acuerdo con la experiencia ($\sim 5\%$) para la mayoría de nucleidos con número atómico superior a 13. En el caso de nucleidos con número atómico elevado y energía de captura electrónica baja (^{193}Pt , ^{194}Hg , ^{205}Pb), en los que no se produce la captura K, no se conoce la precisión del método teórico por no disponer de muestras calibradas de estos nucleidos.

10* - Se ha demostrado que los electrones con energías superiores a 200 keV emitidos en el proceso de conversión interna se detectan con una eficiencia superior al 99%, salvo en el caso de extinciones enormes (factor de mérito >20) que no se dan en las aplicaciones.

11* - El estudio de la interacción de la radiación gamma con el centelleador ha permitido obtener dos conclusiones no descritas hasta ahora en la literatura: Primera, que la eficiencia de detección del espectro de los elec-

trones Compton es independiente de la extinción ($\pm 6\%$ al nivel de confianza del 99,7%) para energías gamma elevadas (mayores de 500 keV); y segunda, - que el efecto debido a la retrodispersión resulta despreciable en el cálculo de la eficiencia gamma.

12* - Como se desprende tanto del cálculo como de la experiencia, la eficiencia de detección de los fotones gamma de energía superior a 500 keV es del orden del 7 al 9% para volúmenes de 15 cm^3 del centelleador utilizado.

13* - Desde el punto de vista práctico, y teniendo en cuenta los resultados de esta memoria, se deduce que, en el caso de emisores beta-gamma en coincidencia, la eficiencia de detección se puede obtener a partir sólo de la eficiencia beta y despreciando el efecto de la radiación gamma, sin que ello - introduzca incertidumbres superiores al 6%.

14* - El estudio del ^{22}Na y otros nucleidos con esquemas de desintegración complejos ha permitido comprobar la generalidad y potencia del método desarrollado, llegándose a la conclusión de que las únicas limitaciones radican en el desconocimiento o en la incertidumbre de algunas constantes de los esquemas de desintegración.

15* - Se han deducido las expresiones generales para calcular la eficiencia de detección de cualquier nucleido beta-gamma y captura electrónica-gamma. También se han dado expresiones simplificadas, así como el grado de validez de las mismas.

16* - El método descrito es de gran interés para la medida de muy bajas actividades cuando se utiliza un espectrómetro de centelleo líquido. Dado que como patrón de calibración se emplea el tritio ($E_{\text{max}} \approx 18 \text{ keV}$), se evitan - los problemas a que da lugar el uso de patrones de calibración con energías superiores al umbral Cherenkov ($\sim 260 \text{ keV}$), responsable del aumento del - fondo en el caso de contaminaciones con emisores beta de energía elevada, - por ejemplo $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Además, las incertidumbres en los valores de las efi-

ciencias obtenidas por el método descrito en la presente memoria son inferiores a las de los patrones de baja actividad disponibles comercialmente.

17* - Por último, con el cálculo de la eficiencia de detección, según se ha descrito en la memoria, es posible la calibración de nucleidos con cortos períodos de semidesintegración. Problema difícil, en la mayoría de los casos, por no disponer de patrones calibrados.

APENDICE A

CALCULO DE ERRORES

DEFINICIONES

Existe una división de opiniones en lo que se refiere al término "error". Para unos, el error es la diferencia entre el resultado experimental y el verdadero valor, mientras que para otros, el error de un resultado es su incertidumbre. Además, la existencia de otros usos de la palabra error viene a oscurecer la terminología. Por ejemplo, se ha designado como error la diferencia entre el resultado de una medida y el valor de un patrón, o a una equivocación en un cálculo.

Las definiciones que se establecen a continuación tienen como finalidad aclarar la terminología empleada en esta memoria y no pretenden, en absoluto, sentar un cuerpo de doctrina. Por otra parte, estas definiciones son las admitidas por muchos de los laboratorios de metrología primaria.

La "incertidumbre" se definirá como los límites estimados para la desviación de un resultado del verdadero valor desconocido, para un nivel de confianza dado y un grado de libertad conocido. El grado de libertad se calcula a partir del número de medidas independientes n , menos el número de datos extraídos. Para el caso en que sólo se extraiga la media, el número f de grados de libertad será $(n-1)$. Para una discusión más amplia sobre este tema se recomienda el trabajo de Campion y col. 1973. Se distinguirá entre incertidumbres aleatorias (errores aleatorios) e incertidumbres sistemáticas (errores sistemáticos) (Campion y col. 1973).

CALCULO DE LAS INCERTIDUMBRES EXPERIMENTALES

La incertidumbre aleatoria, designada también como "precisión" o como -

"reproductibilidad", es una indicación de la fluctuación estadística de los resultados de la medida de una magnitud. Es frecuente aproximarla mediante el error típico e de los datos experimentales, que previamente se han corregido de los efectos de todos los errores sistemáticos conocidos. La expresión de e es:

$$e = \frac{t(f, \alpha) s}{\sqrt{n}} \quad (A-1)$$

donde $t(f, \alpha)$ es el valor de la t de Student, para el número de grados de libertad f y el nivel de confianza α elegido, y s es la desviación típica de una medida dada por la fórmula:

$$s^2 = \frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{n-1} \quad (A-2)$$

Quando el valor de una magnitud física se determina a partir de una combinación de medidas independientes a, b, c, d, \dots de magnitudes físicas relacionadas por una expresión del tipo $Y = f(a, b, c, \dots)$, y las varianzas estimadas de a, b, c, \dots son $s^2(a), s^2(b), s^2(c), \dots$, respectivamente, la varianza estimada de Y será:

$$s^2(Y) = \left(\frac{\partial Y}{\partial a} \right)^2 s^2(a) + \left(\frac{\partial Y}{\partial b} \right)^2 s^2(b) + \left(\frac{\partial Y}{\partial c} \right)^2 s^2(c) + \dots \quad (A-3)$$

Para el valor medio de Y , como $\bar{Y} = f(\bar{a}, \bar{b}, \bar{c}, \dots)$, se tiene:

$$s^2(\bar{Y}) = \left(\frac{\partial \bar{Y}}{\partial \bar{a}} \right)^2 s^2(\bar{a}) + \left(\frac{\partial \bar{Y}}{\partial \bar{b}} \right)^2 s^2(\bar{b}) + \left(\frac{\partial \bar{Y}}{\partial \bar{c}} \right)^2 s^2(\bar{c}) + \dots \quad (A-4)$$

Como ejemplo se obtendrá la desviación típica del parámetro de extinción Q , definido como:

$$Q = \frac{T_1 - F_1}{T_2 - F_2} \quad (A-5)$$

donde T_1 y T_2 son las cuentas totales -Compton más beta- en las vías 1 y 2, respectivamente, cuando la fuente gamma irradia el frasco de centelleo; y F_1 y F_2 son las cuentas totales en las correspondientes vías, debidas a las partículas beta de la muestra. Aplicando (A-3) se tiene:

$$s(Q) = Q \sqrt{\frac{T_1 + F_1}{(T_1 - F_1)^2} + \frac{T_2 + F_2}{(T_2 - F_2)^2}} \quad (A-6)$$

La obtención de la incertidumbre sistemática global δ se ha conseguido combinando las incertidumbres sistemáticas δ_i . Como no existe un método riguroso para realizar la combinación de las δ_i se ha seguido el criterio siguiente: en el caso de pocas incertidumbres o cuando siendo muchas unas pocas son dominantes, se ha aplicado la simple adición:

$$\delta = \sum \delta_i \quad (A-7)$$

Cuando el número de incertidumbres sistemáticas es grande y todas ellas son del mismo orden, se ha efectuado una adición cuadrática:

$$\delta = \sqrt{\sum \delta_i^2} \quad (A-8)$$

Nos hemos apoyado en el hecho de que la adición aritmética da siempre un valor por exceso de la incertidumbre total, mientras que la adición cuadrática tiende a subestimar la incertidumbre sistemática total (Wagner 1969).

A fin de obtener una incertidumbre total (exactitud) se han combinado las incertidumbres aleatoria y sistemática. Tampoco en este caso es posible determinar de forma rigurosa la incertidumbre total. Si se supone que la distribución de las incertidumbres sistemáticas es rectangular, se obtiene una estimación por exceso, mientras que la hipótesis de una distribución normal conduce a una estimación por defecto del error combinado (Levy 1970). Se ha tomado una solución de compromiso expresada por la relación siguiente:

$$\Delta = \frac{ts}{\sqrt{n}} + \delta \quad (A-9)$$

en la cual t se ha tomado al nivel de confianza del 99,7% (ICRU 1968; Grinberg y col. 1973).

INCERTIDUMBRE DE LOS DATOS TEORICOS

Puesto que en el cálculo teórico se utilizan datos obtenidos a partir de tablas, los cuales en algunos casos presentan dispersiones notables, se ha procedido a su compilación y corrección, al rechazo de los datos dudosos y, por último, a la determinación del "mejor" valor y de su incertidumbre. Sólo se han rechazado aquellos datos cuyas incertidumbres son, por lo menos, el triple de las del resultado más exacto, o cuando el autor no expresa el valor de la incertidumbre. En el caso de varios resultados referidos por - autores diferentes se ha calculado la media ponderada, tomándose como peso la inversa del cuadrado de la incertidumbre total. La incertidumbre del resultado final se ha calculado mediante la expresión:

$$\Delta = \left[\sum (1/t s_x)^2 \right]^{-1/2} + \delta \quad (A-10)$$

donde los errores aleatorios individuales de las diferentes medidas "i" se han combinado estadísticamente y las incertidumbres aleatorias se han combinado de acuerdo con una de las siguientes expresiones:

$$\delta = \sum (\delta_j)_{\min} ; \quad \delta = \sqrt{\sum (\delta_j)^2_{\min}} ; \quad \delta = \delta_{\min} \quad (A-11)$$

δ_{\min} es la incertidumbre sistemática total mínima de las distintas medidas. La elección de una u otra de las expresiones (A-11) se efectuará de acuerdo con los criterios señalados en el apartado anterior.

Si los métodos de medida son muy diferentes -incertidumbres sistemáti-

cas debidas a efectos distintos- el mejor valor será la media ponderada:

$$\bar{a} = \frac{1}{\sum (\Delta a_i)^{-2}} \sum a_i (\Delta a_i)^{-2} \quad (A-12)$$

donde $a_i \pm \Delta a_i$ son los valores individuales: $1 \leq i \leq n$. La incertidumbre asociada es el error interno, o sea:

$$(\Delta \bar{a})_{\text{int}} = \sum (1/\Delta a_i^2)^{-1/2} \quad (A-13)$$

También se calcula en cada caso la incertidumbre externa:

$$(\Delta \bar{a})_{\text{ext}} = \left[\frac{1}{\sum (\Delta a_i)^{-2}} \sum \frac{(\bar{a} - a_i)^2}{(\Delta a_i)^2 (n-1)} \right]^{1/2} \quad (A-14)$$

Cuando ambas incertidumbres, la externa y la interna, se desvían significativamente, se vuelven a evaluar las incertidumbres sistemáticas de cada resultado.

Estas reglas se han utilizado en la determinación de las energías beta máximas, en los períodos de semidesintegración, en las constantes atómicas y en las energías e intensidades de las distintas transiciones.

APENDICE B

CONSIDERACIONES ACERCA DE LAS FORMULAS DE SWANK Y TISSEN

Para calcular la eficiencia de detección de un espectrómetro de centelleo en fase líquida, dotado con dos fotomultiplicadores en coincidencia, - se dispone de dos expresiones distintas:

$$\epsilon_1 = \sum_{n=2}^{\infty} P(n,m) (1-2^{1-m}) \quad (B-1)$$

debida a Swank, en la que m es el valor medio del número de fotoelectrones debidos a una partícula de energía E , que interacciona con el líquido de centelleo, y producidos en ambos fotocatodos. Y

$$\epsilon_2 = \sum_{n=2}^{\infty} P(n,m) (1-2^{1-n}) \quad (B-2)$$

debida a Tissen. Como puede comprobarse $\epsilon_1 \neq \epsilon_2$.

Se va a probar que la expresión de Tissen es la correcta. Para ello se partirá de la expresión siguiente:

$$\epsilon = (1 - e^{-\bar{n}})^2 \quad (B-3)$$

-que se ha deducido en el apartado 3.2.4- en la que \bar{n} es el número medio de fotoelectrones producido en cada uno de los fotomultiplicadores, suponiendo que ambos son de iguales características.

De lo dicho hasta aquí se deduce que:

$$m = 2 \bar{n} \quad (B-4)$$

y:

$$\begin{aligned} \xi &= (1 - e^{-\bar{n}})^2 = 1 - 2e^{-\bar{n}} + e^{-2\bar{n}} = \\ &= 1 - 2e^{-\bar{n}} + 2e^{-2\bar{n}} - e^{-2\bar{n}} + 2n e^{-2\bar{n}} - 2n e^{-2\bar{n}} = \\ &= (1 - e^{-2\bar{n}} - 2n e^{-2\bar{n}}) - 2e^{-\bar{n}} (1 - e^{-\bar{n}} - \bar{n} e^{-\bar{n}}) = \\ &= (1 - e^{-m} - m e^{-m}) - 2e^{-\bar{n}} (1 - e^{-\bar{n}} - \bar{n} e^{-\bar{n}}) \end{aligned} \quad (B-5)$$

Teniendo en cuenta que:

$$P_{(0,m)} = e^{-m} ; \quad P_{(0,\bar{n})} = e^{-\bar{n}} \quad (B-6)$$

$$P_{(1,m)} = m e^{-m} ; \quad P_{(1,\bar{n})} = \bar{n} e^{-\bar{n}} \quad (B-7)$$

resulta que:

$$\xi = (1 - P_{(0,m)} - P_{(1,m)}) - 2e^{-\bar{n}} (1 - P_{(0,\bar{n})} - P_{(1,\bar{n})}) \quad (B-8)$$

Además, como:

$$\sum_{n=0}^{\infty} P_{(n,m)} = 1 \Rightarrow 1 - P_{(0,m)} - P_{(1,m)} = \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,m)} \quad (B-9)$$

y

$$\sum_{n=0}^{\infty} P_{(n,\bar{n})} = 1 \Rightarrow 1 - P_{(0,\bar{n})} - P_{(1,\bar{n})} = \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,\bar{n})} \quad (B-10)$$

se tiene que:

$$\xi = \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,m)} - 2e^{-\bar{n}} \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,\bar{n})} \quad (B-11)$$

La relación entre $P_{(n,m)}$ y $P_{(n,\bar{n})}$ se obtiene fácilmente a partir de la expresión:

$$P_{(n,m)} = \frac{(m)^n e^{-m}}{n!} = \frac{(2\bar{n})^n e^{-2\bar{n}}}{n!} = 2^n e^{-\bar{n}} P_{(n,\bar{n})} \quad (B-12)$$

o bien de:

$$P_{(n,\bar{n})} = 2^{-n} e^{+\bar{n}} P_{(n,m)} \quad (B-13)$$

que sustituida en la expresión de la eficiencia permite escribir:

$$\begin{aligned} \xi &= \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,m)} - 2e^{-\bar{n}} \sum_{n=2}^{\infty} e^{+\bar{n}} 2^{-n} P_{(n,m)} = \\ &= \sum_{n=2}^{\infty} P_{(n,m)} (1 - 2^{1-n}) \end{aligned} \quad (B-14)$$

que coincide con la fórmula de Tissen.

APENDICE C

PROGRAMAS DE CALCULO

LRBETA

```

C      CALCULA EL ESPECTRO BETA DE UN NUCLEIDO
C      ESTUDIA LA EFICACIA PARA DIVERSOS FACTORES DE MERITO
DIMENSION X(800),V(800),DRESTO(800),ALM(800),NCART(10)
DIMENSION DMERIT(500),EFI(500)
DIMENSION ESC(5)
DOUBLE PRECISIOND(800),DRESTO(800)
DOUBLE PRECISION SUMA,SUMA2,Z1,FACTOR,CTE,ARG1,ETA,VMEU
DOUBLE PRECISION GAMMAS
C      ENTRADA DE DATOS
READ(5,10)FACTI,FACTF,CINT
1 READ(5,25,END=999) (NCART(I),I=1,10)
READ(5,11)ENER,DPASO
READ(5,12)Z,A,NPRO
25 FORMAT(11A6)
10 FORMAT(I)
C      CALCULO DEL ESPECTRO BETA
GAMMA0=SQRT(1.-(2/137.))**2)
CTE=1.37*A**((1./3.)/396.144
EXPON=-2.*(1.-GAMMA0)
CTE=2.*(1+GAMMA0)*CTE**EXPON
DO 5 I=1,800
X(I)=0.
D(I)=0.
5 V(I)=0.
SUMA=0.
VMEU=0.
N=0
F=1./137.
PI=3.1415926
ELEC=511.
WD=ENER/ELEC+1.
DIN=0.
8 N=N+1
IF (DIN)15,15,35
35 Z1=DIN**2.+2.*ELEC*DIN
D(N)=SQRT(Z1)*(ENER-DIN)**2*(ELEC+DIN)
D(N)=D(N)/(511.**4.)
AUX=F*2*(ELEC+DIN)/SQRT(Z1)
W=DIN/ELEC+1.
ETA=W**2.-1.
ETA=SQRT(ETA)
DNL=2*(DIN/ELEC+1.)*F/ETA
ARG=PI*0.785
FACTOR=CTE*(2.*ETA)**EXPON*DEXP(ARG1)*GAMMAS(GAMMA0,UNU)
ALM(N)=FACTOR
D(N)=D(N)*FACTOR*PROBIS(NPRO,W,WD)
SUMA=SUMA+D(N)

```

```

X(I)=DIN
15 CINE=CIN+OPASO
IF (DIN-ENER)8,9,20
20 CONTINUE
C NORMALIZACION DEL ESPECTRO
SUMA=C.
DO 30 I=1,N
C(I)=D(I)*100./SUMA
VMED=VMED+D(I)*X(I)
SUMA=SUMA+D(I)
DRESTO(I)=100.-SUMA
30 CONTINUE
DO 65 I=1,N
V(I)=D(I)
PESTO(I)=DRESTO(I)
65 CONTINUE
C CALCULO DEL VALOR MEDIO DE LA ENERGIA Y DELA ENERGIA MEDIA
VMEDIO=VMED/100.
DIF1=RESTO(1)-50.
DO 45 KI=2,N
DIF2=RESTO(KI)-50.
IF (ABS(DIF2)-ABS(DIF1))99,48,45
48 MINIMO=KI
DIF1=DIF2
45 CONTINUE
C SE INTERPOLA
A1=(RESTO(MINIMO)+RESTO(MINIMO-1)-2.*PESTO(MINIMO+1))/(X(MINIMO)+X
S(MINIMO-1)-2.*X(MINIMO+1))
B1=RESTO(MINIMO)-.1*X(MINIMO)
EMED=(50.-B1)/A1
NV=0.
VARIA=FACTI
72 NV=NV+1
SUMA3=C.
SUMA4=C.
DO 80 I=2,N
VARIAN=VARIA
IF (X(I).LE.10.)GO TO 76
C=X(I)**0.5457
C=1.-0.9624/4.
GO TO 77
76 C=C.1253*OLOG(X(I))+C.4339
77 CONTINUE
CALX=-X(I)/(2.*VARIAN)
CALX=DAXX*Q
IF (ABS(DAXX).LE.20)DAXX=(1.-EXP(DAXX))**2
IF (ABS(DAXX).GT.20)DAXX=1.
SUMA3=SUMA3+DAXX*D(I)
87 CONTINUE
DMEFIT(NV)=VARIA
EFI(NV)=SUMA3
VARIA=VARIA+QINT
IF (VARIA-FACTI)72,73,90
90 CONTINUE

```

```

WRITE(6,200) (NCART(I), I=1,10)
200 FORMAT(1H1,55X,'NUCLEO = ',10A6//33X,64('*'))/4(5X,'F.MERITO',3X,
  5'EFICIENCIA',7X)/4(5X,8('*')),3X,8('*'),7X))
CO 210 I=1,50
K1=I+50
K2=I+100
K3=I+150
210 WRITE(6,220) OMERIT(I),EFI(I),OMERIT(K1),EFI(K1),OMERIT(K2),EFI(K2)
  5,OMERIT(K3),EFI(K3)
220 FORMAT(4(6X,F6.2,5X,F5.2,5X,2('*'))))
WRITE(6,211)
211 FORMAT(6X,116('*'))
CO 212 I=1,5
212 ESC(I)=0.
ESC(5)=NV
ESC(2)=0.
ESC(4)=5.
CALL TESV('MRBETA','MR',ESC,OMERIT,EFI,'FACTOR DE MERITO',16,
  5'EFICIENCIA',10,500)
GO TO 1
999 CONTINUE
CALL PLOT (0.,0.,999)
STOP
END

```

```

SUBROUTINE TESV(IRUN,ICUE,ESC,AX,AY,IAX,NAX,IAY,NAY,NDIM)
DIMENSION AX(NDIM),AY(NDIM),ESC(5),IAX(5),IAY(5)
CONTADOR DE DIBUJOS
PROVISIONAL
READ(5,5) ITIT
5 FORMAT(A6)
NMARC=NMARC+1
CALL MAPCO(21.0,29.9,IRUN,ICUE)
CALL PLOT(3.5,5.,-3)
NPTS=ABS(ESC(5))
IF (ESC(2).GT.0.) GO TO 20
CALL SCALE(AX,10.5,NPTS,1)
GO TO 30
20 CONTINUE
AX(NPTS+1)=ESC(1)
AX(NPTS+2)=ESC(2)
30 IF (ESC(4).GT.0.) GO TO 40
CALL SCALE(IAY,20.,NPTS,1)
GO TO 50
40 IAY(NPTS+1)=ESC(3)
IAY(NPTS+2)=ESC(4)
50 CONTINUE
CALL PLOT(0.,0.,3)

```

```

CALL LINE(AX,AY,NPTS,1,0,0)
CALL PLOT(-0.5,5.,-3)
IF INMARC,50.1160 TO 60
CALL PLOT(20.0,-50.0,-3)
CALL PLOT(0.0,5.0,-3)
AMARCEP
GO TO 70
60 CONTINUE
CALL PLOT(0.,34.2,-3)
70 CONTINUE
RETURN
END

CALL PLOT(14.5,0.,2)
CALL PLOT(14.5,22.,2)
CALL PLOT(0.,22.,2)
CALL PLOT(0.,0.,2)
CALL PLOT(0.,7.,3)
CALL SYMBOL(11.5,20.5,0.21,IIT,0.,6)
CALL AXIS(0.,0.,IAX,-MAX,14.5,0.,AX(NPTS+1),AX(NPTS+2))
CALL AXIS(0.,0.,IAY,NAY,20.,90.,AY(NPTS+1),AY(NPTS+2))

```

MRCENTE

```

DIMENSION R1(1000),R2(1000),R3(1000),R4(1000),R5(1000),R6(5)
DIMENSION N(1024)
DOUELE PRECISION D(1024)
DIMENSION OX(1026),OY(1026)
DATA APP/1000/
**** H= ALTURA CILINDRO *****
**** NPT(NG. PUNTOS EMISORES) ILIMITADO *****
**** NTP(NG. BETAS/PUNTO).LE.1000 *****
**** E = ENERGIA MAXIPA *****
**** DE = ENERGIA /CANAL *****
**** Z= Z DEL HIJO *****
**** CILINDRO EJE Z,CENTRADO EN ORIGEN *****
      REAC(5,500)R,H,NPT,NTP
500 FORMAT(2F10.0,2I10)
      READ(5,502)FACTI,FACTF,DINT
502 FORMAT(3F10.0)
      DO 10 NOIB=1,1000
***** IES=0 LINEAL ***** IES=1 , LOG *****
      REAC(5,501)NUC,E,DE,ZH,AP,NPRO,IES
501 FORMAT(A6,4X,4F10.0,I10,I10)
      DATA IBL/'
      IF(NUC.EQ.IBL)GO TO 11
      IF(NTE.GT.1000)STOP
      DATA FI/3.1415927/
      CALL ESPEC(D,NCAN,E,DE,ZH,AP,NPRO)
      DO 6 I=1,NCAN
        O(I)=C(I)/100.*NPT
      6 N(I)=C
      WRITE(6,605)NPT
605 FORMAT(1H1,'ESPECTRO BETA TEORICO,NORMALIZADO A',I6,'/',1X,35('*'))
      WRITE(6,603)E,DE,NCAN,ZH,AP,NPRO
      WRITE(6,602)(O(I),I=1,NCAN)
      DO 8 IE=1,NCAN
        NP=C(IE)+.499999
        EN=CE*(IE-1)
        SE=S(EN)
        NP1= (NP+999.)/1000.
        NP2=0
        IF(NP1.EQ.0)GO TO 2
        DO 7 INP=1,NP1
          RR(1)=IE*INP*D(IE)+1
          CALL RANDU(RR,5)
          R1(1)=RR(1)*10000+1
          R2(1)=RR(2)*10000+1
          R3(1)=RR(3)*10000+1
          CALL RANDU(R1,NPF)
          CALL RANDU(R2,NPF)
          CALL RANDU(R3,NPF)

```

```

DO 1 I=1,NPP
NP2=NP2+1
IF (AP2.GT.NPI) GO TO 7
C***** PUNTO EMISOR X,Y,Z *****
RC=R*SCRT(R1(I))
FI=FI*(C.*R2(I)-1.)
Z=H*(2.*R3(I)-1.)/C.
X=RC*COS(FI)
Y=RC*SIN(FI)
R4(I)=RR(4)*10000*I+I
R5(I)=RR(5)*10000*I+I
CONTINUE
CALL RANDU(R4,NTP)
CALL RANDU(R5,NTP)
CONTINUE
DO 2 J=1,NTP
C***** EMISION U,V,W *****
W=2.*R4(J)-1.
W2=1.-W**2
A1=SQRT(W2)
A2=FI*(2.*R5(J)-1.)
U=A1*COS(A2)
V=A1*SIN(A2)
C***** PUNTO FINAL *****
XX=X+L*SE
YY=Y+V*SE
ZZ=Z+W*SE
IF (ABS(XX).GT.R.OR.APS(YY).GT.R.OR.ABS(ZZ).GT.H/2.) GO TO 3
N(IE)=N(IE)+1
GO TO 2
C***** CORTES A CILINDRO INFINITO *****
1. CONTINUE
A=(L**2+V**2)/W**2
B=2.*(U*XX+V*YY)/W
C=X**2+YY**2-R**2
T=B**2-4.*A*C
T1=(-E+SQRT(T))/(Z.*A)
T2=(-E-SQRT(T))/(Z.*A)
Z1=T1+ZZ
Z2=T2+ZZ
X1=(Z1-ZZ)*U/W+XX
X2=(Z2-ZZ)*U/W+XX
Y1=(Z1-ZZ)*V/W+YY
Y2=(Z2-ZZ)*V/W+YY
XI=X1
YI=Y1
ZI=Z1
PE=(X2-X)*U+(Y2-Y)*V+(Z2-Z)*W
IF (PE.LE.0) GO TO 4
XI=X2
YI=Y2

```

```

Z1=Z2
4 IF (ABS(Z1).LE.H/2.100 TO 5
  IF (Z1.GT.0) Z1=H/2.
  IF (Z1.LT.0) Z1=-H/2.
  XI=(Z1-Z2)*U/W+XX
  YI=(Z1-Z2)*V/W+YY
5 DZ=(XI-X)**2+(YI-Y)**2+(Z1-Z1)**2
  DD=SQRT(DD)
  EE=DD*EN/SE
  CALL FIS(N,EE,DE)
2 CONTINUE
  CONTINUE
1 CONTINUE
7 CONTINUE
8 CONTINUE
  WRITE(6,6C6)
606 FORMAT(1H1,'HISTOGRAMA DE CENTELLEO(MONTECARLO) PARA')
  WRITE(6,6C6)P,H,NPT,HTF
606 FORMAT(1X,'CILINDRO R=',F12.3,3X,'H=',F12.3,2X,'CENTRADO EJE Z',
  1/,2X,'NPT=',I10,2X,'NTP=',I4)
  WR T (6 6C3)E,DE,NCAN,ZH,AP,NPRO
CO603 FORMAT(1X,/,1X,'E=',F12.3,' KEV',3X,'CE=',F12.3,2X,'NCAN=',I7,
  1X,'Z=',F8.0,2X,'A=',F8.0,3X,'NPRO=',I3)
  WRITE(6,601)(N1L),L=1,NCAN)
-601 FORMAT(1X,10I12)
  CONTINUE
602 FORMAT(1H1,(1X,1CD12.6))
  NN=C
  DO 9 I=1,NCAN
5 NN=NN+N(I)
  WRITE(6,6C4)NN
604 FORMAT(1X,'NN=',I12)
  DATA CIMX,CIMY/20.,15./
  DATA XH,YH/0.,0./
  CALL PARCO(CIMX,CIMY,'CENTE','MR')
  TX=CIPX-2.
  TY=CIPY-3.4
  TZ=.75
  CALL PLOT(1.,1.,-3)
  CALL SYMBOL(1.,TY+1.7,.2,'ESPECTRO BETA DE ',0.,17)
  CALL SYMBOL(999.,TY+1.7,.2,NUC,0.,6)
  CALL SYMBOL(999.,TY+1.7,.2,'(Z,A,EMAX,NP) E HISTOGRAMA DE CENTELLE
10 SIMLLADO POR MONTECARLO',0.,53)
  CALL SYMBOL(5.,TY+1.4,.2,'PARA CILINDRO(R,H),CON ΔE(KEV)/CANAL',
10.,36)
  TTX=3.
  TTY=TY+.8
  CALL SYMBOL(TTX,TTY,.2,'Z      A      EMAX      NP      R      H      ΔE
1  SUCEOS',0.,56)
  TTY=TTY-.5
  CALL NUMBER(TTX,TTY,.2,ZP,C.,-1)
  CALL NUMBER(TTX+1.,TTY,.2,AP,0.,-1)

```



```

CALL NUMBER(TTX+2.,TTY,.2,F,.1)
PP=APRO
CALL NUMBER(TTX+3.8,TTY,.2,PP,.1)
CALL NUMBER(TTX+4.6,TTY,.2,R,.3)
CALL NUMBER(TTX+5.8,TTY,.2,H,.3)
CALL NUMBER(TTX+7.4,TTY,.2,DE,.3)
PG=AM
CALL NUMBER(TTX+9.6,TTY,.2,P0,.1)
OP=C
OG=C
DO 101 I=1,NCAN
OX(I)=(I-1)*DE
OY(I)=D(I)*NN/NPT
IF(IES.EQ.1.AND.OY(I).LT..1)OY(I)=.1
IF(N(I).LT.OP)OP=N(I)
IF(N(I).GT.OG)OG=N(I)
101 CONTINUE
OX(NCAN+1)=OX(1)
OX(NCAN+2)=(OX(NCAN)-OX(1))/TX
OY(NCAN+1)=OP
OY(NCAN+2)=(OG-OP)/(TZ*TY)
CONTINUE
IF(IES.EQ.1)CALL SCALG(OY,TZ*TY,NCAN,1)
IF(IES.EQ.1)CALL LGXS(0.,0.,*N(E)*AE',+7,TY,90.,OY(NCAN+1),
10Y(NCAN+2))
IF(IES.NE.1)CALL AXIS(0.,0.,*N(E)*AE',+7,TY,90.,OY(NCAN+1),OY(NCAN
1+2))
CALL AXIS(0.,0.,*KEV',-3,TX,0.,OX(NCAN+1),OX(NCAN+2))
IF(IES.EQ.1)CALL LGLIN(OX,OY,NCAN,1,0,C,1)
IF(IES.NE.1)CALL LINE(OX,OY,NCAN,1,0,C)
DO 102 I=1,NCAN
RT=N(I)
OY(I)=RT
IF(IES.EQ.1.AND.RT.LT..1)RT=.1
IF(IES.EQ.1)OY(I)=ALOG10(RT)
102 CONTINUE
CALL NEWPEN(2)
C*** HISTOGRAMA *****
CCX=TX/NCAN
IF(IES.EQ.1)OP=OY(NCAN+1)
IF(IES.EQ.1)OP=ALOG10(OP)
IF(IES.EQ.1)OG=1C.**(TY*TZ*OY(NCAN+2)+CP)
IF(IES.EQ.1)OG=ALOG10(OG)
CCY=TY*TZ/(OG-OP)
CALL FLOT(C,0.,3)
CX=-CCX
DO 103 I=1,NCAN
CX=CX+CCX
CY=CCY*(OY(I)-OP)
CALL FLOT(CX,CY,2)
103 CALL FLOT(CX+CCX,CY,2)

```

```

CALL FLOT(CX+CCX,J.,2)
CALL FLOT(-1.,-1.,-3)
YH=YH+DIMY*4.
CALL FLOT(C.,DIMY*4.,-3)
CALL EFIT(FACTI,FACTF,CINT,NCAN,N,DE,NN)
IF(YH+DIMY.LT.84.)GO TO 1C
CALL FLOT(DIMX*4.,-9C.,-3)
CALL FLOT(C.,4.,-3)
YH=C.
1C CALL NEWPEN(1)
11 CONTINUE
CALL FLOT(C.,C.,999)
STOP
END

```

```

SUBROUTINE EFIT(FACTI,FACTF,CINT,NCAN,NQ,DE,NN)
DIMENSION DMERIT(300),EFI(300)
DIMENSION NQ(1024)

```

C***** CALCULO DE LA EFICACIA * F(MERITO) *****

```

NV=C
VARIA=FACTI

```

72 NV=NV+1

```

SUMA3=0
SUMA4=0

```

```

DO 80 I=1,NCAN

```

```

VARIAV=VARIA

```

C ***** ENERGIA MEDIA DE CADA CANAL *****

```

EN=CE*(I-.5)

```

```

IF(EN.GE.10.)Q=1, -.9625*EN**(-.5457)

```

```

IF(EN.LT.10.)Q=.1253*ALOG(EN)+.4339

```

```

DAUX=-EN*Q/(2.*VARIAV)

```

```

IF(ABS(DAUX).LE.20)DAUX=(1.-EXP(DAUX))**2

```

```

IF(ABS(DAUX).GT.20)DAUX=1.

```

```

SUMA3=SUMA3+DAUX*NQ(I)+100./NN

```

8C CONTINUE

```

DMERIT(NV)=VARIA

```

```

EFI(NV)=SUMA3

```

```

VARIA=VARIA+CINT

```

```

IF(VARIA-FACTF)72,72,9C

```

9C WRITE(6,600)

600 FORMAT(1H1,35X,'CALCULO DE LA EFICACIA TOTAL',/,

1 36X,28(' '),/,4(6X,'F.MERITO',3X,'EFICACIA',7X),/,

1 4(6X,8(' '),3X,8(' '),7X))

```

DO 21C I=1,50

```

```

K1=I+50

```

```

K2=I+100

```

```

K3=I+150

```

```

210 WRITE(6,620)DNERIT(I),EFI(I),DNERIT(K1),EFI(K1),DNERIT(K2),EFI(K2),
1,DNERIT(K3),EFI(K3)
620 FORMAT(4(8X,F6.2,5X,F6.2,5X,2('*'))
WRITE(6,611)
611 FORMAT(6X,116('*'))
RETURN
END

```

```

SUBROUTINE ESPECID,N,ENER,CPASO,Z,A,NPFOI
C *****
C ... CALCULA EL ESPECTRO BETA DE UN NUCLEIDO
C *****
DIMENSION X(1024),V(1024),PESTO(1024),ALM(1024)
DOUBLE PRECISION D(1024),DPESTO(1024)
DOUBLE PRECISION SUMA,SUMAZ,Z1,FACTOR,CTE,ARG1,ETA,VMED
DOUBLE PRECISION GAMMAS
CONTINUE
C. CALCULO DEL ESPECTRO BETA
GAMMAC=SQRT(1.-(Z/137.)**2)
CTE=1.37*A**((1./3.)/386.144)
EXPON=-2.*(1.-GAMMAC)
CTE=Z.*(1.+GAMMAC)*CTE**EXPON
C ***
DO 5 I=1,1024
X(I)=C.
D(I)=C.
5 V(I)=C.
SUMA=C.
VMED=C.
N=0
F=1./137.
PI=3.1415926
ELEC=511.
W0=ENER/ELEC+1.
DIN=0.
E N=N+1
IF(DIN)5,15,35
35 Z1=DIN**2.+2.*ELEC*DIN
DIN=SQRT(Z1)*(ELEC-DIN)**2*(ELEC+DIN)
D(N)=C(N)/(511.**4.)
AUX=F*2*(ELEC+DIN)/SQRT(Z1)
W=DIN/ELEC+1.
ETA=W**2.-1.
ETA=SQRT(ETA)
DNU=Z*(DIN/ELEC+1.)*F/ETA
ARG1=PI*DNU
FACTOR=CTE*(2.*ETA)**EXPON*DEXP(ARG1)*GAMMAS(GAMMAC,DNU)

```

```

ALM(N)=FACTOR
D(N)=C(N)*FACTOR*PROHE(NPRO,W,WE)
SUMA=SUMA+D(N)
X(N)=C(N)
15 DIN=DIN+DPASC
IF(CIN-ENER)8,8,20
20 CONTINUE
C ***
C NORMALIZACION DEL ESPECTRO
C ***
SUMA2=C.
DO 30 I=1,N
D(I)=C(I)*100./SUMA
VMED=VMED+D(I)*X(I)
SUMA2=SUMA2+D(I)
DRESTO(I)=100.-SUMA2
30 CONTINUE
DO 65 I=1,N
V(I)=C(I)
RESTO(I)=DRESTO(I)
65 CONTINUE
C **
C ***
C CALCULO DEL VALOR MEDIO DE LA ENERGIA Y DE LA ENERGIA MEDIA
C ***
VMEDIC=VMED/100.
DIF1=RESTO(1)-50.
DO 45 KI=2,N
DIF2=RESTO(KI)-50.
IF(ABS(DIF2)-ABS(DIF1))48,48,45
48 MINIMC=KI
DIF1=DIF2
45 CONTINUE
C SE INTERPOLA
A1=(RESTO(MINIMO)+RESTO(MINIMO-1)-2.*RESTO(MINIMO+1))/(X(MINIMO)+X
S(MINIMO-1)-2.*X(MINIMO+1))
B1=RESTO(MINIMO)-A1*X(MINIMO)
EMEC=(50.-B1)/A1
RETLA
END

SUBROUTINE HIS(N,E,DE)
DIMENSION N(1024)
NE=E/DE+1
N(NE)=N(NE)+1
RETLA
END

```

```

      DOUBLE PRECISION FUNCTION GAMMA(GAMMAO,DNU)
C *****
C CALCULA EL COCIENTE MOD(GAMMA(GAMMAO+I.DNU))/GAMMA(2.*GAMMAO+1)
C Y LO ELEVA AL CUADRADO
C *****
      DEF JNE F2(N,B)=(DFLGAT(N)+B)**2
      DOUBLE PRECISION SUMA,SUMA2,S1,S2,A,Y1
      PI=3.141592654
      SUMA=C.
      SUMA2=C.
      A=6.DC/(GAMMAO+S.)
      DO 10 I=C,4
      Y1=A*DNU
      S1=(Y1**2+I**2)/((GAMMAO+I)**2+DNU**2)
      SUMA=SUMA+DLOG(S1)
10  CONTINUE
      Y1=A*DNU
      S1=PI/(Y1*CSINH(PI*Y1))
      S2=25.+Y1**2
      SUMA=SUMA+DLOG(S1)+DLOG(S2)
      S1=((5+GAMMAO)**2+DNU**2)
      S1=2.-DLOG(S1)+2.*DNU*CATAN(DNU/(5.+GAMMAO))/(5.+GAMMAO)+1./((5.+
      SGAMMAO)**2+DNU**2)*6.*A)
      SUMA=SUMA+(1.-GAMMAO)*S1-11.*DLOG(A)
      SUMA=CEXP(SUMA)
C CALCULO DE LA GAMMA REAL
      ARG=2.*GAMMAO+1.
      CALL GAMMA(ARG,RESUL,S20,S30)
20  SUMA=SUMA/(RESUL**2)
      GAMPAS=SUMA
      RETRN
30  WRITE(6,40)
40  FORMAT(10X,'ARGUMENTO NEGATIVO O NULO EN LA FUNCION GAMMA')
      RETRN
      END

```

```

      FUNCTION S(E)
C***** ARGUMENTO E EN KEY *****
C***** S EN CM *****
      S= C.11 * (SQRT( 1. + 22.4 * (E/1000.)**2 ) - 1. )
      RETRN
      END

```

```
FUNCTION PROHIE(NPRO,W,WC)
***
CALCULA EL FACTOR DE PROHIBICION PARA TRANSICIONES PROHIBIDAS
IF(NPRO.NE.3)GO TO 5
PROHIE=1.
RETLRA
5 P=W**2-1.
  Q=(167-W)**2
  GO TO (10,20,30),NPRC
10 PROHIE=P+Q
  RETLRA
20 PROHIE=P**2+Q**2+10.*P*Q/3.
  RETLRA
30 PROHIE=P**3+Q**3+7.*P*Q*(P+Q)
  RETLRA
END
```

MRCECI

```

DIMENSION F1(20),F2(20),NCAPI(10)
DIMENSION OMERIT(400),EFI(400)
DIMENSION E(20),XIN(20),EA(10),XI(20)
DIMENSION CE(20),CI1(20),S(20)
READ(5,500) FACTI,DINCR,FACIF
READ(5,500) OMEK,OMEL,PK,PL
READ(5,500) AKLL,AKMM,ALMM,ECAR
READ(5,500) XKL,XKM,XLM
READ(5,500) CK,CL,EIK,EIL,GAM,PGAM
READ(5,11) INCART(I1,I=1,10)
11 FORMAT(10A6)
500 FORMAT(1)
C CALCULA PROBABILIDAD ESCAPE RAYOS X
E(1)=XKL
E(2)=XKM
E(3)=XLM
E(4)= GAM
DO 50 I=1,4
IF(8.-E(I))20,13,10
10 XIN(I)=1.254E-3*E(I)*EXP(0.3156*E(I))
GO TO 50
20 IF(15-E(I))35,30,30
30 XIN(I)=1.-0.055*E(I)+1.325
GO TO 50
35 IF(25.-E(I))40,36,36
36 XIN(I)=1.-0.02+7.2/E(I)
GO TO 50
40 IF(103.-E(I))44,41,41
41 XIN(I)=0.6747*EXP(1.705E-3*E(I))
GO TO 50
44 XIN(I)=1
50 CONTINUE
C CALCULA EXTINCION POR AUTOIONIZACION
EA(1)=AKLL
EA(2)=AKMM
EA(3)=ALMM
EA(4)=ECAR
EA(5)=XKL
EA(6)=XKM
EA(7)=XLM
EA(8)=EIK
EA(9)=EIL
EA(10)=GAM-ECAR
DO 60 J=1,10
IF(EA(J)-10.)58,59,59
58 S(J)=3.1256*ALOG(EA(J))+0.4339
GO TO 60

```

```

59 S(J)=1.-0.9624*EA(J)**(-0.5457)
60 CONTINUE
C   CALCULO DE CONSTANTES
   OK=1.-OMEK
   OL=1.-OMEL
   XI(1)=1.-XIN(1)
   XI(2)=1.-XIN(2)
   XI(3)=1.-XIN(3)
   XI(4)=1.-XIN(4)
C   PROBABILIDADES VIA CAPTURA
   F1(1)=PK*OK*OL**2
   F1(2)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XIN(3)
   F1(3)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XI(3)
   F1(4)=PK*OK*(OMEL*XIN(3))**2
   F1(5)=2.*PK*OK*XIN(3)*XI(3)*OMEL**2
   F1(6)=PK*OK*(OMEL*XI(3))**2
   F1(7)=PK*OL*OMEK*XIN(1)
   F1(8)=PK*OL*OMEK*XI(1)
   F1(9)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XIN(3)
   F1(10)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XI(3)
   F1(11)=PK*OMEK*OMEL*XI(3)*XIN(1)
   F1(12)=PL*OMEL*XI(3)
   F1(13)=PL*OL
C   PROBABILIDADES VIA CONVERSION
   F2(1)=CK*OK*OL**2
   F2(2)=CK*OK*OL*2.*OMEL*XIN(3)
   F2(3)=CK*OK*OL*2.*OMEL*XI(3)
   F2(4)=CK*OK*(OMEL*XIN(3))**2
   F2(5)=2.*CK*OK*XIN(3)*XI(3)*OMEL**2
   F2(6)=CK*OK*(OMEL*XI(3))**2
   F2(7)=CK*OL*OMEK*XIN(1)
   F2(8)=CK*OL*OMEK*XI(1)
   F2(9)=CK*OMEK*OMEL*XI(1)*XIN(3)
   F2(10)=CK*OMEK*OMEL*XI(1)*XI(3)
   F2(11)=CK*OMEK*OMEL*XI(3)*XIN(1)
   F2(12)=CL*OMEL*XI(3)
   F2(13)=CL*OL
   FGAM=3AM
   WRITE(6,333)(F1(I),I=1,13),(F2(I),I=1,13)
   WRITE(6,333)-(XI(I),I=1,4),FGAM
333 FORMAT(13(2X,F5.3))
C   ENERGIAS CORREGIDAS
   AKL=A(1)*S(1)
   AKM=A(2)*S(2)
   ALM=A(3)*S(3)
   ECA=ECA7*S(4)
   X1=XKL*S(5)
   X2=XKM*S(6)
   X3=XLM*S(7)
   EIK=EIK*S(8)

```



```

EIL=E(L*S(9)
EGA=(3A4-ECAP)*S(13)
C ELECTRONES PRODUCIDOS EN LA C.E
CFACT=FACTI
100 NIN=NIN+1
FACT=CFACT*2.
CE(1)=(AKL+ALM*2.)/FACT
CE(2)=(AKL+ALM)/FACT
CE(3)=(AKL+ALM*X3+ECA)/FACT
CE(4)=(AKL+2*X3)/FACT
CE(5)=(AKL+X3+ECA)/FACT
CE(6)=(AKL+2.*(X3+ECA))/FACT
CE(7)=ALM/FACT
CE(8)=(ALM*X1+ECA)/FACT
CE(9)=(X1+X3+ECA)/FACT
CE(10)=(X1+X3+2.*ECA)/FACT
CE(11)=(X3+ECA)/FACT
CE(12)=(X3+ECA)/FACT
CE(13)=ALM/FACT
WRITE(6,333)(CE(I),I=1,13)
C ELECTRONES PRODUCIDOS EN LA C.I
DO 80 I=1,11
CII(I)=CE(I)*EIK/FACT
80 CONTINUE
CII(12)=CE(12)*EIL/FACT
CII(13)=CE(13)*EIL/FACT
GAM1=EGA/FACT
C CALCULO EFICIENCIA
EFI1=0.
EFI2=0.
EFI3=0.
DO 400 J=1,13
DO 300 I=1,13
FP=F1(J)*F2(I)
ENER=CE(J)+CII(I)
EFI1=EFI1+FP*(1.-EXP(-ENER))**2
300 CONTINUE
FIS=F1(J)*PGAM*X1(4)
ENR=CE(J)+GAM1
EFI2=EFI2+FIS*(1.-EXP(-ENR))**2
FIM=F1(J)*PGAM*XIN(4)
ENE=CE(J)
EFI3=EFI3+FIM*(1.-EXP(-ENE))**2
400 CONTINUE
EEIC=EFI1+EFI2+EFI3
550 CONTINUE
DMERIT(NIN)=CFACT

```

```
      EFI(NINI)=EFIC*130.  
      IF(CFACT.GT.FACTF)GO TO 230  
      CFACT=CFACT+DINCR  
      GO TO 120  
210 CONTINUE  
      WRITE(6,200)(NCART(I),I=1,10)  
200 FORMAT(1H1,35X,10A6/33X,S4('*')/4(6X,'F.MERITO',3X,'EFICACIA',7X)/  
S/4(6X,81('*'),3X,81('*'),7X))  
      DO 210 I=1,50  
      K1=I+50  
      K2=I+100  
      K3=I+150  
210 WRITE(6,220)OMERIT(I),EFI(I),OMERIT(K1),EFI(K1),OMERIT(K2),EFI(K2)  
S,OMERIT(K3),EFI(K3)  
220 FORMAT(4(8X,F6.2,5X,F6.2,5X,21('*')))  
      WRITE (5,211)  
211 FORMAT(5X,116('*'))  
      STOP  
      END
```

MRISO

```

DIMENSION VIA(21),NCART(10)
DIMENSION PROB(30),DMERIT(400),EFI(400)
DIMENSION E(10),XIN(10),EA(20),XI(10)
DIMENSION S(10)
1 READ(5,11,END=999)(NCART(I),I=1,10)
READ(5,500) OMEK,OMEL,PK,PL
READ(5,500) AKLL,AKMM,ALHM,ECAR,AKLM
READ(5,500) XKL,XKM,XLM
READ(5,500) ECIK,ECIL
READ(5,500) PGAM,EGAM
READ(5,500) FACTI,DINCR,FACTF
WRITE(6,500)FACTI
11 FORMAT(10A6)
500 FORMAT(1)
C CALCULA PROBABILIDAD ESCAPE RAYOS X
E(1)=XKL
E(2)=XKM
E(3)=XLM
DO 50 I=1,3
IF(8-E(I))20,10,10
10 XIN(I)=1.254E-3*E(I)*EXP(0.3156*E(I))
60 TO 50
20 IF(15-E(I))35,30,30
30 XIN(I)=0.055*E(I)-0.325
60 TO 50
35 IF(25-E(I))40,36,36
36 XIN(I)=1.-(0.02+7.2/E(I))
60 TO 50
40 IF(100-E(I))44,41,41
41 XIN(I)=0.6747*EXP(1.705E-3*E(I))
60 TO 50
44 XIN(I)=1.
50 CONTINUE
C CALCULA EXTINCION POR AUTOIONIZACION
EA(1)=AKLL
EA(2)=AKMM
EA(3)=ALHM
EA(4)=ECAR
EA(5)=XKL
EA(6)=XKM
EA(7)=XLM
EA(8)=AKLM
EA(9)=ECIK
EA(10)=ECIL
EA(11)=EGAM-ECAR
DO 60 J=1,11
IF(EA-10.)58,59,59

```

```

58 S(J)=J.1256*ALOG(EA(J))+0.4339
60 TO 60
59 S(J)=1.-0.9624*EA(J)**(-0.5457)
60 CONTINUE
C   CALCULO DE CONSTANTES
    OK=1.-OMEK
    OL=1.-OMEL
    XI(1)=1.-XIN(1)
    XI(2)=1.-XIN(2)
    XI(3)=1.-XIN(3)
C   CALCULO DE LA PROBABILIDADDE CADA VIA
    PROB(1)=PK*OK*OL**2.
    PRCB(2)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XIN(3)
    PROB(3)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XI(3)
    PROB(4)=PK*OK*(OMEL*XIN(3))**2
    PROB(5)=2.*PK*OK*XI(3)*XIN(3)*OMEL**2
    PROB(6)=PK*OK*(OMEL*XI(3))**2
    PRCB(7)=PK*OL*OMEK*XIN(1)
    PRCB(8)=PK*OL*OMEK*XI(1)
    PROB(9)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XIN(3)
    PRCB(10)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XI(3)
    PROB(11)=PK*OMEK*OMEL*XI(3)*XIN(1)
    PRCB(12)=PK*OMEK*XI(2)
    PRCB(13)=PL*OMEL*XIN(3)
    PROB(14)=PL*OMEL*XI(3)
    PROB(15)=PL*OL
C   ENERGIAS CORREGIDAS
    AKL=AKLL*S(1)
    AKH=AKHH*S(2)
    ALM=ALMH*S(3)
    ECA=ECAR*S(4)
    AKR=AKLM*S(8)
    ECK=ECKK*S(9)
    ECL=ECLL*S(10)
    X1=XKL*S(5)
    X2=XKH*S(6)
    X3=XLH*S(7)
C   ELECTRONES PRODUCIDOS
    CFACT=FACTI
    WRITE(6,502)FACTI,CFACT
502 FORMAT(10X,'FACTI=',F5.2,5X,'CFACT=',F5.2)
    NIN=C
100 NIN=NIN+1
    FACT=CFACT*2.
    VIA(1)=(ECK+AKL+2.*ALM)/FACT
    VIA(2)=(ECK+AKL+ALM)/FACT
    VIA(3)=(ECK+AKL+ALM+X3+ECA)/FACT
    VIA(4)=(ECK+AKL+2.*X3)/FACT
    VIA(5)=(ECK+AKL+X3+ECA)/FACT
    VIA(6)=(ECK+AKL+2.*X3+2.*ECA)/FACT
    VIA(7)=(ECK+ALM)/FACT
    VIA(8)=(ECK+ALM+X1+ECA)/FACT

```

```

VIA(9)=(ECK+X1+X3+ECA)/FACT
VIA(10)=(ECK+X1+X3+2.*ECA)/FACT
VIA(11)=(ECK+X3+ECA)/FACT
VIA(12)=0.
VIA(13)=0.
VIA(14)=(ECL+X3+ECA)/FACT
VIA(15)=(ECL+ALM)/FACT
EG=EA(11)*S(11)+EA(4)*S(4)
EG=EG/FACT
C  CALCULO DE EFICACIAS
EFIC=0.
DO 550 I=1,21
EFIC=EFIC+PROB(I)*(1.-EXP(-VIA(I)))**2
550 CONTINUE
EFIC=EFIC+PGAM*(1.-EXP(-EG))**2
DMERIT(NIN)=CFACT
WRITE(6,503)NIN,DMERIT(NIN),CFACT
503 FORMAT(10X,'NIN=',I3,5X,'DMERIT=',F5.2,5X,'CFACT=',F5.2)
EFI(NIN)=EFIC*100.
IF(CFACT.GT.FACTF)GO TO 230
CFACT=CFACT+DINCR
GO TO 100
230 CONTINUE
WRITE(6,200)(NCART(I),I=1,10)
200 FORMAT(1H1,35X,10A6/33X,64('*'))/4(6X,'F.MERITO',3X,'EFICACIA',7X)/
3/4(6X,8('*'),3X,8('*'),7X))
DO 210 I=1,50
K1=I+50
K2=I+100
K3=I+150
210 WRITE(6,220)DMERIT(I),EFI(I),DMERIT(K1),EFI(K1),DMERIT(K2),EFI(K2)
3,DMERIT(K3),EFI(K3)
220 FORMAT(4(8X,F6.2,5X,F6.2,5X,2('*')))
WRITE(6,211)
211 FORMAT(6X,116('*'))
GO TO 1
999 CONTINUE
STOP
END

```

MRVIA

```

DIMENSION VIA(21),NCARD(10)
DIMENSION PROB(30),DMERIT(400),EFI(400)
DIMENSION E(10),XIN(10),EA(10),XI(10)
DIMENSION S(10)
REAC(5,500)FACT1,DINCR,FACTF
1 READ(5,11,END=999)(NCARD(I),I=1,10)
REAC(5,500) OMEK,OMEL,PK,PL
REAC(5,500) AKLL,AKMH,ALMH,ECAR,AKLM
REAC(5,500) XKL,XKM,XLM
REAC(5,500)RKLM,RKMH,RBA
11 FORMAT(10A6)
500 FORMAT(1)
C CALCULA PROBABILIDAD ESCAPE RAYOS X
E(1)=XKL
E(2)=XKM
E(3)=XLM
DO50 I=1,3
IF(8-E(I))20,10,10
C XIN(I)=1.254E-3*E(I)*EXP(0.3156*E(I))
60 10 50
20 IF(15-E(I))35,30,30
30 XIN(I)=0.055*E(I)-0.325
60 10 50
35 IF(25.-E(I))40,36,36
36 XIN(I)=1.-0.02*7.2/E(I)
60 10 50
40 IF(100.-E(I))44,41,41
41 XIN(I)=0.6747*EXP(1.705E-3*E(I))
60 10 50
44 XIN(I)=1.
50 CONTINUE
C CALCULA EXTINCION POR AUTOIONIZACION
EA(1)=AKLL
EA(2)=AKMH
EA(3)=ALMH
EA(4)=ECAR
EA(5)=XKL
EA(6)=XKM
EA(7)=XLM
EA(8)=AKLM
DO 60 J=1,8
IF(EA-10.)58,59,59
58 S(J)=0.1256*ALOG(EA(J))+0.4339
60 TC 60
59 S(J)=1.-0.9624*EA(J)**(-0.5457)
60 CONTINUE
C CALCULO DE CONSTANTES
OK=1.-OMEK
OL=1.-OMEL

```

```

XI(1)=1.-XIN(1)
XI(2)=1.-XIN(2)
XI(3)=1.-XIN(3)
DEN1=1.+RKLM+RKMM
PKLL=1./DEN1
PKLP=RKLM/DEN1
PKMP=RKMM/DEN1
PKL=1./(1.+RBA)
PKM=REA/(1.+RBA)
C  CALCULO DE LA PROBABILIDADDE CADA VIA
PROB(1)=PK*OK*OL**2.*PKLL
PROB(2)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XIN(3)*PKLL
PROB(3)=PK*OK*OL*2.*OMEL*XI(3)*PKLL
PROB(4)=PK*OK*(OMEL*XIN(3))**2*PKLL
PROB(5)=2.*PK*OK*XI(3)*XIN(3)*OMEL**2*PKLL
PROB(6)=PK*OK*(OMEL*XI(3))**2*PKLL
PROB(7)=PK*OL*OMEK*XIN(1)*PKL
PROB(8)=PK*OL*OMEK*XI(1)*PKL
PROB(9)=PK*OMEK*OMEL*XIN(1)*XIN(3)*PKL
PROB(10)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XIN(3)*PKL
PROB(11)=PK*OMEK*OMEL*XI(1)*XI(3)*PKL
PROB(12)=PK*OMEK*OMEL*XI(3)*XIN(1)*PKL
PROB(13)=PK*OK*OL*PKLM
PROB(14)=PK*OK*OMEL*XIN(3)*PKLM
PROB(15)=PK*OK*OMEL*XI(3)*PKLM
PROB(16)=PK*OK*PKMM
PROB(17)=PK*OMEK*XIN(2)*PKM
PROB(18)=PK*OMEK*XI(2)*PKM
PROB(19)=PL*OMEL*XIN(3)
PROB(20)=PL*OMEL*XI(3)
PROB(21)=PL*OL
SUM=0
DO 65 I=1,21

```

```

SUM=SUM+PROB(I)

```

```

65 CONTINUE

```

```

WRITE(6,333)(PROB(I),I=1,21)

```

```

333 FORMAT(7(3X,F6.4))

```

```

WRITE(6,334)SUM

```

```

334 FORMAT(F8.4)

```

```

C  ENERGIAS CORREGIDAS

```

```

AKL=AKLL*S(1)

```

```

AKM=AKMM*S(2)

```

```

ALM=ALMM*S(3)

```

```

ECA=ECAR*S(4)

```

```

AKR=AKLM*S(8)

```

```

X1=XKL*S(5)

```

```

X2=XKP*S(6)

```

```

X3=XLP*S(7)

```

```

C  ELECTRONES PRODUCIDOS

```

```

CFACT=FACTI

```

```

NIN=0

```

```

100 NIN=NIN+1

```

```

FACT=CFACT*2.

```

```

VIA(1)=(AKL+2.*ALM)/FACT
VIA(2)=(AKL+ALM)/FACT
VIA(3)=(AKL+ALM+X3+ECA)/FACT
VIA(4)=(AKL)/FACT
VIA(5)=(AKL+X3+ECA)/FACT
VIA(6)=(AKL+2.*X3+2.*ECA)/FACT
VIA(7)=ALM/FACT
VIA(8)=(ALM+X1+ECA)/FACT
VIA(9)=0.
VIA(10)=(X1+ECA)/FACT
VIA(11)=(X1+X3+2.*ECA)/FACT
VIA(12)=(X3+ECA)/FACT
VIA(13)=(AKR+ALM)/FACT
VIA(14)=AKR/FACT
VIA(15)=(AKR+X3+ECA)/FACT
VIA(16)=AKR/FACT
VIA(17)=0.
VIA(18)=(X2+ECA)/FACT
VIA(19)=0.
VIA(20)=(X3+ECA)/FACT
VIA(21)=ALM/FACT
C_____ CALCULO DE EFICACIAS
EFIC=C.
DO 550 I=1,21
EFIC=EFIC+PROB(I)*(1.-EXP(-VIA(I)))*2
550 CONTINUE
DHERIT(NIN)=CFACT
EFI(NIN)=EFIC*100.
IF(CFACT.GT.FACTF)GO TO 230
CFACT=CFACT+DINCR
GO TO 100.
230 CONTINUE
WRITE(6,200)(NCARD(I),I=1,10)
200 FORMAT(1H1,35X,10A6/33X,64('**')/4(6X,'F.MERITO',3X,'EFICACIA',7X)/
5/4(6X,8('**'),3X,8('**'),7X))
DO 210 I=1,50
K1=I+50
K2=I+100
K3=I+150
210 WRITE(6,220)DHERIT(I),EFI(I),DHERIT(K1),EFI(K1),DHERIT(K2),EFI(K2)
5,DHERIT(K3),EFI(K3)
220 FORMAT(9(8X,F6.2,5X,F6.2,5X,2('**'))
WRITE(6,211)
211 FORMAT(16X,116('**'))
GO TO 1
995 CONTINUE
STOP
END

```


BIBLIOGRAFIA

- AGENO M., CHIOZZOTTO M. y QUERZOLI R., 1950, Phys.Rev. 79, 720
- ANDERS O.U. y MEINKE W.W., 1957, Nucleonics 15 n 12, 68
- ARNITAGE B.H. y ROSSER W.G.V., 1958, Proc. Phys. Soc. (London) 71, 335
- ARNOLD J.R., 1954, Science 119, 155
- BABA S., BABA H. y NATSUME H., 1971, J. Inorg.Nucl.Chem. 33, 589
- BALDWIN G.C. y FRIEDMAN S.I., 1965, Rev.Sci.Instrum. 36, 16
- BAMBYNECK W., CRASEMANN B., FINK R.W., FREUND H.U., MARK H., SWIFT C.D.,
PRICE R.E. y VENUGOPALA RAO P., 1972, Rev. Mod. Phys. 44, 716
- BAMBYNECK W., BEHRENS H., CHEN M.H., CRASEMANN B., FITZPATRICK M.L., LEDINGHAM
W.D., GENZ H., MUTTERER M., INTEMAN R.L., 1977, Rev. Mod. Phys. 49, 77
- BAILLIE L.A., 1960, Int.J.Appl.Rad.Isotop. 8, 1
- BEARDEN J.A., 1967, Rev. Mod. Phys. 39, 78
- BEARDEN J.A. y BURR A.F., 1967, Rev. Mod. Phys. 39, 125
- BECK E. y DANIEL H., 1968, Z. Phys. 216, 229
- BELCHER E.H., 1953, J.Sci.Instrum. 30, 286
- BENJAMIN P.W., KEMSHALL C.D. y SMITH D.L.E., 1962, A.W.R.E. Report NR/A-2/62
- BERGER M.J. y SELTZER S.M., 1964, NAS-NRC, 1133, pag. 205
- BERGKVIST K.E., 1972, B39, 317 y B39, 371
- BERLMAN I.B., 1965, Handbook of Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules
(Academic Press, Nueva York)
- BIRKS J.B., 1951, Proc.Phys.Soc. London Sect. A64, 874
- BIRKS J.B. y KUCHELA K.N., 1961, Proc.Phys.Soc. London 77, 1083

- BIRKS J.B., 1964, The Theory and Practice of Scintillation Counting (Pergamon Press, Oxford) pag. 58, 185
- BIRKS J.B., CONTE J.C. y WALKER G., 1966, IEEE Trans.Nucl.Sci. NS-13(3), 148
- BIRKS J.B., 1971, en "Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting" editado por: D.L. Horrocks y C.T. Peng (Academic Press, Nueva York) pag. 3
- BISI A., TERRANI S. y ZAPPA L., 1955, Nuovo Cim. 10 V2, 1297
- BLACK W.W. y HEATH B.L., 1967, Nucl.Phys. A90, 650
- BOOIJ H.M.W., VAN HOEK, E.A., VAN DER MOLEN H., SLOT W.F. y BLOK J., 1971, Nucl.Phys. A160, 337
- BREITENBERGER E., 1955, Prog.Nucl.Phys. 4, 56
- BRAY G.A., 1960, Analyt. Biochem. 1, 279
- BURGMAN J.O., 1965, Atompraxis 11, 37
- BUSH E.T., 1963, Anal.Chem. 35, 1024
- CAMPION P.J., BURNS J.E. y WILLIAMS A., 1973, "A code of practice for the detailed statement of accuracy" (National Physical Laboratory, London)
- COLE A., 1969, Radiation Res. 38, 7
- CONNOR R.D. y FAIRWEATHER I.L., 1957, Proc.Phys.Soc. London 70A, 769
- COSOLITO F.J., COHEN N. y PETROW H.G., 1968, Anal.Chem. 40, 213
- CRAUN R.L. y SMITH D.L., 1970, Nucl.Instrum. Methods 80, 239
- CHAROENKWAN P., 1965, Nucl.Instrum. Methods 34, 93
- CH'ING CH'ENG-JUI y NOVIKOV I.S., 1962, Sov.Phys. JETP 15, 252
- CHOU C.N., 1952, Phys.Rev. 87, 904
- CHRISTMAS P. y CROSS P., 1978, Metrologia 14, 157
- DANIEL H., 1968, Rev.Mod.Phys. 40, 659
- DANIEL H., KASCHER G.Th., SCHMITT H. y SPRINGER K., 1964, Phys.Rev. 136B, 1240

- DARIS R. y St-PIERRE C., 1969, Nucl.Phys. A138, 545
- DAVIDSON J.D. y FEIGELSON P., 1957, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 2, 1
- DELANEY C.F.G. y WALTON P.W., 1964, Nucl.Instrum.Methods 25, 353
- DERN R.J. y HART W.L., 1961, J.Lab.Clin.Med. 57, 322
- EAKINS J.D. y BROWN D.A., 1966, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 17, 391
- EMERY J.F., REYNOLDS S.A. y WYATT E.I., 1972, Nucl.Sci.Eng. 48, 319
- ENGELKE C.E. y ULLMAN J.D., 1974, Phys.Rev. 9C, 2358
- FELDMAN L. y WU C.S., 1952, Phys.Rev. 87, 1091
- FERMI E., 1934, Z.Phys. 88, 254; traducido al inglés por F.L. WILSON, 1968, Am.J.Phys. 36, 1150
- FLOTHMANN D., GILS H.J., WIESNER W. y LOHKEN R., 1975, Z.Phys. A272, 219
- FLOTHMANN D., WIESNER W., LOHKEN R. y REBEL H., 1969, Z.Phys. 225, 164
- FLYNN K.F., GLENDENIN L.E., 1959, Phys.Rev. 116, 744
- FLYNN K.F., GLENDENIN L.E. y PRODI V., 1971, en "Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting" editado por: D.L. HORROCKS y C.T. PENN (Academic Press, Nueva York) pag. 687
- FOSTER Th., 1960, Radiat.Res. 2, 326
- GARFINKEL S.B., MANN W.B., MEDLOCK R.W. y YURA O., 1965, Int.J.Appl.Radiat. Isotop. 16, 27
- GERMAI G., 1970, Int.J.Appl.Radiat.Isotop. 21, 587
- GIBSON J.A.B., 1971, AERE-R-6919
- GIBSON J.A.B. y GALE H.J., 1968, J.Phys.E 1, 99
- GIBSON J.A.B. y MARSHAL M., 1972, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 23, 321
- GIBSON J.A.B., 1979, Comunicación privada
- GILS H.J., FLOTHMANN D., LOHKEN R. y WIESNER W., 1972, Nucl.Instrum.Methods 105, 179

- GOLDSTEIN G., 1965, Nucleonics, 23, nº 3, 67
- GOODIER I.W. y PRITCHARD D.H., 1966, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 17, 121
- GOODIER I.W., MAKEPEACE J.L. y STUART L.E.H., 1975, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 26, 490
- GRAU MALONDA A. y GARCIA TORAÑO E., 1978, JEN-427
- GRAU MALONDA A. y MARTIN CASALLO M.T., 1975, Qr 0960/I1
- GRAU MALONDA A. y MARTIN CASALLO M.T., 1976, JEN-360
- GREEN A.E.S. y PETERSON L.R., 1968, J.Geophysical Research 73, 233
- GRINBERG B., BRETHON J.P., LAGOUTINE F., LEGALLIC Y., LEGRAND J., WAPSTRA A.H., WEISS H.M., BAMBYNEK W., DE ROOST E., HANSEN H.H. y SPERNOL A., 1973, Atomic Energy Review 11, 515
- GUINN V.P., 1958, en "Liquid Scintillation Counting", editado por: C.G. BELL y F.N. HAYES (Pergamon Press, Nueva York) pag. 175
- HAAF F.E.L. TEN, 1972, en "Liquid Scintillation Counting", vol. 2, editado por: M.A. CROOK, P. JOHNSON y B. SCALES (Heiden, Londres) pag. 39
- HAAF F.E.L. TEN, 1977, en "Liquid Scintillation Counting" vol. 4, editado por: M.A. CROOK y P. JOHNSON (Heiden, Londres) pag. 63
- HANSEN H.H., LOWENTHAL G., SPERNOL A., VAN der EIJK W. y VANINBROUKX R., 1969, Z.Phys. 218, 25
- HASHIZUME A., 1966, CEA-R-2839
- HAYES F.N., 1956, Int.J.Appl.Radiat.Isotope 1, 46
- HEATH R.L., 1964, IDO-16880-1
- HELLSTROEM S., 1961, "Instruments and Measurements" (Academic Press, Nueva York) pag. 631
- HELMER R.G., GREENWOOD R.C. y GEMRKE R.J., 1971, Nucl.Instr.Meth. 96, 173
- HIEBERT R.D. y WATTS R.J., 1953, Nucleonics 11 (12), 38

- HOFSTADTER R., LIEBSON S.H. y ELLIOT J.O., 1950, Phys.Rev. 78, 81
- HORROCKS D.L. y STUDIER M.H., 1961, Anal.Chem. 33, 615
- HORROCKS D.L. y HARKNES A.L., 1962, Phys.Rev. 125, 1619
- HORROCKS D.L., 1971, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 22, 258
- HORROCKS D.L., 1972, Photochem. and Photobiol. 15, 239
- HORROCKS D.L., 1974, "Applications of Liquid Scintillation Counting" (Academic Press, Nueva York) pag. 26
- HORROCKS D.L., 1976, en "Liquid Scintillation Science and Technology", editado por A.A. NOUJAIM, C. EDISS y L.I. WEIBE (Academic Press, Nueva York) pag. 185
- HSUE S.T., LANGER L.M. y TANG S.M., 1966, Nucl.Phys. 96, 47
- ICRU, 1968, n° 12
- IINUMA T.A., BURCH P.R.J., 1962, Nucl.Instrum.Methods 16, 247
- JAFFEE M., y FORD L.A., 1970, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 21, 49
- JESSE W.P., 1964, J.Chem.Phys. 41, 2060
- JOHNSON R.G., JOHNSON O.E. y LANGER L.M., 1956, Phys.Rev. 102, 1142
- JORDAN P., 1971, Nucl.Instrum.Methods 97, 107
- KALLMANN H., 1947, Z.Naturforsch A2, 439, 262
- KALLMANN H., 1950, Phys.Rev. 78, 621
- KARTTUNEN E., FREUND H.U. y FINK R.W., 1969, Nucl.Phys. A131, 343
- KING T.A. y VOLTZ R., 1966, Proc.Roy.Soc. A289, 424
- KLEIN J., 1968, Tesis, Universidad de Estrasburgo
- KOBAYASHI Y. y MANDSLEY D.V., 1974, "Biological Applications of Liquid Scintillation Counting" (Academic Press, Nueva York) pag. 31
- KONOPINSKI E.J. y ROSE M.E., 1965, en "Alpha, Beta and Gamma Ray Spectrometry" editado por: KAI SIEGBAHN (North-Holland, P.O., Amsterdam)

- KONOPINSKI E.J., 1966, "Beta Radioactivity" (Oxford Clerendon Press) pag. 204
- KORALOV V., LE GALLIC Y., y VATIN R., 1970, J.Appl.Radiat.Isotopes 21, 443
- KOSTROUM V.O., CHEN M.H. y GRASEMANN B., 1971, Phys.Rev. A3, 533
- LAGOUTINE F., LEGRAND J. y LE GALLIC Y., 1969, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 20
868
- LAGOUTINE F., LEGRAND J., PERROT C., BRETHON J.P. y MOREL J., 1972, Int.J.
Appl.Radiat.Isotopes 23, 219
- LANE R.O. y ZAFFARANO D.J., 1954, Phys.Rev. 94, 960
- LANGER L.M. y PRICE Jr. H.C., 1949, Phys.Rev. 76, 641
- LANGER L.M., MOTZ J.W. y PRICE Jr. H.C., 1950, Phys.Rev. 77, 798
- LANGER L.M., SPEJEWSKI E.H. y WORTMAN D.E., 1964, Phys.Rev. 135B, 581
- LAUSTRIAT G., VOLTZ R. y KLEIN J., 1970, en "The Current States of Liquid
Scintillation Counting" editado por E.D. BRANSOME Jr. (Grune and Stratton,
Nueva York) pag. 13
- LAWSON C.W., HIRAYAMA F. y LIPSKY S., 1969, J.Chem.Phys. 51, 1590
- LEA D.E., 1947, "Actions of Radiations on Living Cells" (Cambridge University
Press, Londres)
- LEDERER C.M., HOLLANDER J.M. y PERLMAN I., 1967, "Table of Isotopes" (Wiley
and Sons, Nueva York)
- LEDERER C.M., SHIRLEY V.S., BROWNE E., DAIRIKI J.M., DOEHLER R.E., SHIHAB-
ELDIN A.A., TULI J.K. y BUYRN A.B., 1978, "Table os Isotopes" (Wiley and
Sons, Nueva York)
- LEGRAND J., PEROLAT J.P., LAGOUTINE F. y LE GALLIC Y., 1974, 1976, 1978,
"Table des Radionucleides" (C.E.A.; LMRI)
- LEGRAND J., BLONDEL M., MAGNIER P., PERROT C. y BRETHON J.P., 1973, CEA-R-4427
- LERCH P. y COSANDY M., 1966, Adv.Tracer.Meth. 2, 107

- LEUTZ W. y WENNINGER H., 1967, Nucl.Phys. A99, 55
- LEUZ H. y ZIEGLER K., 1964, Nucl.Phys. 50, 648
- LEVY P.S., 1970, Technometrics 12, 162
- LEWIS V.E., 1970, Nucl.Phys. A151, 120
- LIPSKY S. y BURTON M., 1959, J.Chem.Phys. 31, 1221
- LOMBARD F.J. y MARTIN F., 1961, Rev.Sci.Instrum. 32, 200
- LUKENS Jr. H.R., 1961, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 12, 134
- MAERKER R.E. y BIRKHOFF R.D., 1953, Phys.Rev. 89, 1159
- MANDUCHI C. y ZANNONI G., 1962, Nucl.Phys. 36, 497
- MARSHALL M., HOLT P.D. y GIBSON J.A.B., 1970, Int.J.Radiat.Biol. 18 (2), 139
- MARTIN M.J., 1976, ORNL-5114
- Mc GUIRE J.H., 1970, Phys.Rev. A2, 273
- Mc GUIRE E.J., 1972, Phys.Rev. A5, 1043
- Mc MAHON T.D. y BAERG A.P., 1976, Can.J.Phys. 54, 1433
- Mc MASTER W.H., KER DEL GRANDE N., MALLET J.H., SCOFIELD N.E., CAHIL R. y HUBBEL J.H., 1967, UCRL-50174
- MERRIT J. y TAYLOR J.G., 1965, Anal.Chem. 37, 351
- MILLER M., KERELAKES J.G. y FRIEDMAN B.I., 1969, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 20, 133
- MOLER R.B. y FINK R.W., 1963, Phys.Rev. 131, 821
- MOORE R.B., HAYAKAWA S.I. y REHFELD D.M., 1976, Nucl.Instrum.Methods 133, 457
- MOZUMDER A. y MAGEE J.L., 1966, Rad.Res. 28, 203
- NAGARAJAN T., RAVINDRAWATH M. y VENKATA REDDY K., 1971, Nuovo Cim. s 11 v 2A, 662

- NEARY M.P. y BUDD A.L., 1970, en "The Current Status of Liquid Scintillation Counting", editado por E.D. BRAHNSOME Jr., (Grune and Stratton, Nueva York) pag. 273
- NELMS A.T., 1956, NBS Circular 577
- NICHOLS R.T., Mc ADALE R.E. y JANSEN E.N., 1961, Phys.Rev. 122, 172
- NIX D., 1972, Thesis, Georgia Institute of Technology
- OKITA G.T., SPRAT J. y LEROY G.V., 1956, Nucleonics 14 n° 3, 76
- PARK J.J.H. y CHRISTMAS P., 1967, Can.J.Phys. 45, 262 1
- PENG C.T., 1970, en "Modern Aspects of Liquid Scintillation Counting" (Beckman)
- PENGRA J.G., GENZ H., RENIER J.P. y FINK R.W., 1972, Phys.Rev. C5, 2007
- PERNA D.W., 1969, Inst.J.Appl.Radiat.Isotopes 20, 613
- PERSOON B.I. y PLESSER I., 1971, Nucl.Phys. A167, 470
- PERRY S.W. y WARNER G.T., 1963, Int.J.Appl.Radiat.Isotopes 14, 397
- PIEL Jr. W.F., 1973, Nucl.Phys. A203, 369
- PIERSON W.L., 1967, Phys.Rev. 159, 951
- POHM A.V., WANDELL R.C., POWERS J.P. y JENSEN E.N., 1955, Phys.Rev. 97, 432
- POLENSKY H.F. y SELIGSON D., 1965, Analyt Biochem. 10, 347
- RAMAN S. y GOVE N.B., 1973, Phys.Rev. 76, 1995
- REICH M. y SCHUFFERLING H.M., 1974, Z.Phys. 271, 107
- REYNOLDS G.T., HARRISON F.B. y SALVINI G., 1950, Phys.Rev. 78, 488
- RODE B., 1974, Z. Naturforsch 29A, 261
- RYVES T.B., 1960, J.Sci.Instrum. 37, 201
- SALEM S.I., PANOSSIAN S.L. y KRAUSE R.A., 1974, Atomic Data and Nuclear Data Tables 14, 91

- SALGO R.C. y STAUB H.H., 1969, Nucl.Phys. A138, 417
- SAXON D., 1948, Phys.Rev. 74, 1264
- SHIRLEY D.A., 1973, Phys.Rev. A7, 1520
- SMITH C.C., SELINGER H.H. y STEYN J., 1956, J.Res.Nat.Bur.Std. 57, 251
- SMITH K.M. y LEWIS G.M., 1966, Nucl.Phys. 89, 561
- SNYDER R.E. y BEARD G.B., 1966, Phys.Rev. 147, 867
- SPEJEWSKI E.H., 1966, Nucl.Phys. 92, 481
- SPEJEWSKI E.H. y WILLET J.B., 1967, Nucl.Phys. A99, 625
- STEYN J., 1956, Proc.Phys.Soc. London Sect. A69, 865
- SWANK R.K., 1958, en "Liquid Scintillation Counting", editado por: C.G. BELL y F.N. HAYES (Pergamon Press, London) pag. 35
- TAKIWE M. y ISHIKAWA H., 1979, Nucl.Inst. Meth. 164, 343
- TAIMUTY S.I., 1951, Phys.Rev. 81, 461
- TISSSEN, M.Iu., 1958, Soviet Phys., Tech.Phys. 3, 1489
- TORTI R.P., COTTLES V.M., DAVE V.R., NELSON J.A., WILENZICK R.M., 1972, Phys. Rev. C6 (5), 1686
- TUSTING R.F. y TAKHAR P.S., 1962, IRE Trans.Nucl.Sci. NS9 (3), 36
- VANINBROUKS R. y SPERNOL A., 1965, Int.J.Appl.Rad.Isotopes 16, 289
- VATAI E., VARGA D. y URCHIN J., 1968, Nucl.Phys. A116, 637
- VENUGOPALA RAO P., CHEN M.H. y CRASEMANB., 1972, Phys.Rev. A5, 997
- VOLTZ R., LAUSTRIAT G. y COCHE A., 1963, C.R.Acad.Sci. Paris, 257, 1473
- VOLTZ R., 1969, en "Actions Chimiques et Biologiques des Radiations", editado por M. HAISSINSKY (Masson, Paris) vol. 13, pag. 1-55
- WALTERS D.L. y BHALLA C.P., 1971, Phys.Rev. A3, 519
- WANGERMANN S., 1962, Isotopentechn. 2, 357

- WATT D.E. y RAMSDEN D., 1964, "High Sensitivity Counting Techniques" (Pergamon Press, Londres), pag. 155
- WENNINGER H., STIEVE J. y LEUTZ H., 1968, Nucl.Phys. A109, 561
- WHITTAKER E.T. y WATSON G.N., 1958, "A Course of Modern Analysis" (Cambridge University Press)
- WILLETT J.B. y SPEJEWski E.H., 1967, Nucl.Instrum.Meth. 52, 77
- WILLIAMS A., 1964, Nucl.Phys. 52, 324
- WILLIAMS P.H., 1968, J.Appl.Radiat.Isotopes 19, 377
- WOHN F.K. y TALBERT Jr. W.L., 1970, Nucl.Phys. A146, 33
- WOLFSON J.L. y COLLIER A.J., 1968, Nucl.Phys. A112, 156
- WRIGHT G.T., 1953a, Phys.Rev. 91, 1282
- WRIGHT B.T., 1953b, Phys.Rev. 90, 159
- WRIGHT G.T., 1954, J.Sci.Instrum. 31, 377
- YOSHIZAWA Y., 1958, Nucl.Phys. 5, 122
- ZEMANN H., SEMRAD D. y PAUL H., 1971, Nucl.Phys. A175, 385
- ZOLLERANK L. y REIDEL R., 1963, Kernenergie 6, 163

